

Neue Methoden der Charakterisierung und Kompression intensiver ultrakurzer optischer Impulse

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)
im Fach Physik

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I
Humboldt-Universität zu Berlin

von
Herr Dipl.-Phys. Gero Stibenz
geboren am 01.05.1974 in Jena

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:
Prof. Dr. Christoph Marksches

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:
Prof. Dr. Christian Limberg

Gutachter:

1. Prof. Dr. Thomas Elsässer
2. Prof. Dr. Oliver Benson
3. Prof. Dr. Uwe Morgner

eingereicht am:	12. Dezember 2006
Tag der mündlichen Prüfung:	12. Juli 2007

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Ultrakurze Laserimpulse: Grundlagen	5
2.1	Mathematische Beschreibung eines optischen Impulses	5
2.1.1	Die Separation von Trägerwelle und Einhüllender	6
2.2	Impulsausbreitung und Formung	7
2.2.1	Lineare Impulsausbreitung in dispersiven Medien	7
2.2.2	Nichtlineare Impulsausbreitung in isotropen Medien	13
2.3	Methoden der Erzeugung von Sub-10-fs-Impulsen	19
2.4	Charakterisierung ultrakurzer optischer Laserimpulse	22
2.4.1	Die Autokorrelation	22
2.4.2	Das FROG-Verfahren	29
2.4.3	Das SPIDER-Verfahren	39
3	Charakterisierung von Sub-10 fs-Impulsen: Weiterentwicklungen	49
3.1	Der optimierte SPIDER-Aufbau	50
3.1.1	Phasenempfindliche Rauschunterdrückung	53
3.1.2	Optimierung der Empfindlichkeit	58
3.1.3	Test des optimierten SPIDER-Aufbaus	61
3.2	Das räumlich kodierende SPIDER-Verfahren	64
3.3	Das interferometrische FROG	70
3.3.1	Die Struktur der IFROG-Spur	71
3.3.2	Die Struktur der FM-FROG-Spur	74
3.3.3	Der FM-FROG- Algorithmus zur Impulsrekonstruktion	77
3.3.4	Experimenteller Aufbau	79
3.3.5	Die Filterung der FM-FROG-Spur	80
3.3.6	Impulsmessungen	83
3.4	Ein Vergleich der Methoden	89

4	Anwendung der Impulscharakterisierung auf die Impulskompression	97
4.1	Der Hohlfaserkompressor	99
4.1.1	Lichtausbreitung in hohlen Wellenleitern	99
4.1.2	Dispersionskompensation: gechirpte Spiegel	100
4.1.3	Erzeugung des kürzesten Impulses	104
4.1.4	Erkenntnisse über den Prozess der Hohlfaserkompression	108
4.1.5	Grenzen der Hohlfaserkompression	109
4.2	Selbstkompression im Filament	110
4.2.1	Grundlagen zur Filamentation und Selbstkompression .	112
4.2.2	Experimente zur Selbstkompression	115
4.2.3	Simulationsrechnungen zur Selbstkompression	119
4.2.4	Diskussion	125
5	Zusammenfassung	127
A	Die Wigner-Funktion eines ultrakurzen optischen Impulses	131
B	Gerchberg-Saxton-Algorithmus	134
C	FM-FROG-Impulsrekonstruktion	136
D	Ein Ansatz zur direkten Phasenrekonstruktion: MEFISTO	140
	Literaturverzeichnis	145
	Publikationen	163
	Danksagung	165
	Lebenslauf	167
	Selbständigkeitserklärung	168

Kapitel 1

Einleitung

Seit dem Bau des ersten Lasers vor über 40 Jahren [1] hält diese Technologie Einzug in immer neue Bereiche des alltäglichen Lebens und der Wissenschaft. Die einzigartigen Eigenschaften des Laserlichts eröffnen eine Vielzahl von Anwendungsmöglichkeiten beginnend bei der Auslesung von Barcodes in Supermärkten bis hin zur Auslösung von Kernfusionsprozessen [2]. Auf dem Gebiet der Ultrakurzzeit-Laserphysik kommen Laser zum Einsatz, die im Gegensatz zu einer monochromatischen bzw. spektral schmalbandigen, kontinuierlichen (cw: „continuous wave“) elektromagnetischen Strahlung gepulstes Laserlicht mit einer bestimmten Wiederholrate emittieren. Heutzutage gelten ultrakurze Laserimpulse, die im sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich auf eine Impulsdauer unter 3 fs [3] ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) und im fernen ultravioletten Spektralbereich bis auf eine Dauer von ca. 300 as [4] ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) komprimiert werden können, als die kürzesten kontrollierbaren Ereignisse.

Welcher Nutzen liegt nun in der Verfügbarkeit so kurzer kohärenter Lichtblitze? Eine Reihe schneller Vorgänge in der Natur, genauer, alles, was schneller als einige 10 ms abläuft, entzieht sich unserer visuellen Wahrnehmung. Mit Hilfe der Stroboskop-Fotografie werden schnelle makroskopische Objekte während der Belichtungsdauer durch einen Lichtblitz in ihrer Bewegung quasi eingefroren abgebildet. Mittels elektronischer Schaltprozesse können Vorgänge im Mikro- oder Nanosekundenbereich zeitlich aufgelöst werden. Damit lassen sich selbst die schnellsten Abläufe der makroskopischen Welt erfassen. Ist man jedoch an der Dynamik mikroskopischer Systeme interessiert, muss eine neue Methodik angewandt werden. Ultrakurze Laserimpulse, deren Dauer im Femtosekundenbereich liegt, stellen hierbei das wichtigste experimentelle Werkzeug zur Untersuchung schneller atomarer und molekularer Prozesse dar. Dies ist das Gebiet der Femtosekunden-Spektroskopie, in der u.a. die Dynamik chemischer Reaktionen bzw. einzelner Reaktionsschrit-

te, die auf der Zeitskala der Molekülschwingungen ablaufen, untersucht wird [5, 6].

Eine weitere wichtige Eigenschaft ultrakurzer Laserimpulse besteht in ihrer großen Spitzenleistung, die in Kombination mit einer hohen Fokussierbarkeit einen Intensitätsbereich oberhalb von 10 GW/cm^2 ($1 \text{ GW} = 10^9 \text{ W}$) erschließt. Solch große Intensitäten stehen allerdings nur jeweils wenige Femtosekunden lang zur Verfügung. Die in diesem Zeitintervall auftretenden hohen elektrischen Feldstärken verändern auch die optischen Eigenschaften von Materie. Die daraus resultierenden Phänomene, wie die Erzeugung neuer Frequenzkomponenten, werden im Rahmen der nichtlinearen Optik erklärt (siehe z.B. [7, 8]) und finden weitreichende Anwendungen.

Für viele Anwendungen ultrakurzer optischer Impulse ist eine detaillierte Kenntnis der Impulsstruktur notwendig. Neben der Impulsdauer sind auch Phasen- und Chirpverlauf wichtige Impulsparameter. Der Zugang zu diesen Parametern ist für ein Verständnis der Wechselwirkung zwischen Lichtimpuls und Materie von großer Bedeutung. So konnte in Experimenten zur kohärenten Kontrolle [9] gezeigt werden, dass ein bestimmter Quantenzustand eines Moleküls durch die Wechselwirkung mit einem gechirpten Impuls präpariert werden kann [10]. Neben diesem Beispiel gibt es eine Reihe weiterer Experimente, die nur unter der Voraussetzung einer präzisen Kenntnis des zeitlichen und spektralen Intensitäts- und Phasenverlaufs des verwendeten ultrakurzen Impulses ein vollständiges Bild der im untersuchten Medium stattfindenden Wechselwirkungen liefern [11, 12, 13, 14]. Dies ist einer der Gründe, weshalb präzise Methoden zur Messung der elektrischen Feldstruktur ultrakurzer Impulse unentbehrlich sind. Die hier vorgelegte Arbeit stellt deshalb ausführlich verbesserte Methoden zur Messung der elektrischen Feldstruktur ultrakurzer Impulse vor (siehe Kapitel 3).

Da die Reaktion selbst schneller elektronischer Detektoren um Größenordnungen langsamer ist als die Dauer des ultrakurzen Eingangsimpulses, stehen im optischen Spektralbereich lediglich zeitlich integrierende Detektoren oder Energiedetektoren zur Verfügung. Charakterisierungstechniken ultrakurzer optischer Impulse müssen demnach mit langsamen Detektoren auskommen und verwenden deshalb den Trick der Umsetzung einer Zeitmessung in eine Längenmessung oder verlagern die Impulsmessung komplett in die Frequenzdomäne. Stehen kurze Abtastimpulse zur Verfügung, deren Dauer unterhalb der halben Periode einer elektrischen Feldschwingung des zu charakterisierenden Impulses liegt, ist eine direkte Ausmessung der elektrischen Feldstruktur möglich [15, 16, 17]. Im Falle ultrakurzer Impulse des sichtbaren

und ultravioletten Spektralbereichs kann in der Regel nicht auf noch kürzere Abtastimpulse zurückgegriffen werden. Stattdessen existieren moderne Charakterisierungsmethoden, die auf indirektem Wege die Rekonstruktion der Intensitätseinhüllenden und der Phase eines optischen Impulses erlauben. Allerdings nimmt deren Zuverlässigkeit im Impulsdauerbereich unter 10 fs rapide ab. Der Grund hierfür liegt in der komplexen zeitlichen und spektralen Struktur dieser Impulse, deren exakte Bestimmung eine technische Herausforderung darstellt. Ferner führen die enormen spektralen Bandbreiten der kürzesten Impulse von bis zu einer optischen Oktave klassische Charakterisierungstechniken an ihre physikalische Grenze. Zur Vermeidung von hieraus resultierenden Messartefakten und für eine verlässliche Charakterisierung der kürzesten optischen Impulse sind Weiterentwicklungen bewährter Charakterisierungstechniken ebenso notwendig wie die Entwicklung neuer Verfahren. Aus diesen Gründen werden in dieser Arbeit neue Entwicklungen auf dem Gebiet der Messung ultrakurzer bzw. ultrabreitbandiger optischer Impulse speziell für Impulsdauern unter 10 fs vorgestellt und experimentell getestet.

Eine Anwendung finden diese Charakterisierungsverfahren bei der Kompression von Multimillijoule-Impulsen zu Impulsdauern unter 10 fs. Dabei füllt die im Rahmen dieser Arbeit untersuchte neue Methode der Filamentkompression eine wichtige Lücke im Impulsenergiebereich traditioneller Kompressionsverfahren. Mit diesen ist es momentan immer noch sehr schwierig, Impulse mit >1 mJ Energie auf die Dauer weniger Feldzyklen zu komprimieren [18, 19]. So kann die bisherige Standardtechnik, der Hohlfaserkompressor [20, 21], bei Impulsrepetitionenraten von 1 kHz nicht in diesem Leistungsbereich betrieben werden. Gerade bei der Untersuchung und Anwendung nichtlinearer Prozesse hoher Ordnung, speziell auf dem Gebiet der Erzeugung hoher Harmonischer und von Attosekundenimpulsen im fernen ultravioletten Spektralbereich, sind jedoch energiereiche optische Impulse mit einer Dauer unter 8 fs gefragt [22, 23].

Wie in dieser Arbeit gezeigt wird, ist es speziell dem Einsatz weiterentwickelter und optimierter Techniken der Impulscharakterisierung zu verdanken, dass neuartige Kompressionsmethoden, wie die Filamentkompression, erfolgreich getestet werden konnten. So kann eine im Experiment vorliegende Dispersionsfehlانpassung trotz der Komplexität der Impulsstruktur in Echtzeit gemessen und sofort korrigiert werden. Ein zusätzlicher Erkenntnisgewinn über die Ursachen und Mechanismen der Impulsformung im Kompressionsschritt wird ebenfalls erst durch die Charakterisierungsergebnisse ermöglicht.

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt aufgebaut: In einem Grundlagenkapi-

tel werden zunächst die Eigenschaften ultrakurzer optischer Impulse im Zusammenhang mit linearen und nichtlinearen Impulsformungseffekten eingeführt. Eine Beschreibung der wichtigsten Impulscharakterisierungsverfahren schließt dieses Kapitel ab. Kapitel 3 beschäftigt sich dann ausschließlich mit im Rahmen dieser Arbeit entstandenen oder getesteten Weiterentwicklungen der zuvor beschriebenen Charakterisierungsverfahren. Hohlfaser- und Filamentkompression intensiver optischer Impulse sind die Themen des vierten Kapitels, wobei neuartige Konzepte der Dispersionskompensation vorgestellt werden. Die Zusammenfassung liefert nochmals einen Überblick über die weiterentwickelten Charakterisierungstechniken ultrakurzer optischer Impulse sowie über die mit modernen Impulskompressionsverfahren erzielten Resultate.

Kapitel 2

Ultrakurze Laserimpulse: Grundlagen

2.1 Mathematische Beschreibung eines optischen Impulses

Das elektrische Feld $E(t)$ eines Lichtimpulses an einem festen Ort kann durch die Überlagerung von ebenen Wellen unterschiedlicher Frequenz und gleicher Phase dargestellt werden:

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega, \quad (2.1)$$

wobei beachtet werden muss, dass $\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}(-\omega)$ gilt. Hierbei ist $\tilde{E}(\omega) = |\tilde{E}(\omega)| e^{i\varphi(\omega)}$ die komplexe Amplitude der ebenen Welle mit der Frequenz ω . Die Amplitudenfunktion bestimmt damit das Spektrum des Lichtimpulses gemäß $I(\omega) \propto |\tilde{E}(\omega)|^2$. In Anlehnung an die Nomenklatur der Referenz [24] werden komplexe Größen mit einer Tilde versehen. Eine Integration über den positiven Frequenzbereich liefert das komplexe elektrische Feld des Impulses

$$\tilde{E}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{+\infty} \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (2.2)$$

Das physikalische Impulsfeld beträgt dann $E(t) = 2 \operatorname{Re}[\tilde{E}(t)]$.

2.1.1 Die Separation von Trägerwelle und Einhüllender

Da ein Feldbeitrag bei $\omega = 0$ nicht propagiert, lässt sich für das Spektrum eines Impulses entfernt vom Entstehungsort eine Schwerpunktsfrequenz

$$\omega_0 = \frac{\int_0^\infty \omega |E(\omega)|^2 d\omega}{\int_0^\infty |E(\omega)|^2 d\omega} \quad (2.3)$$

und eine endliche Breite $\Delta\omega_0$ angeben. Unter diesen Voraussetzungen führt eine Substitution der Frequenz ω in Gleichung (2.2) durch $\omega_0 + \Delta\omega$ zu

$$\begin{aligned} \tilde{E}(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{+\infty} \tilde{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{-i(\omega_0 + \Delta\omega)t} d(\Delta\omega) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-i(\omega_0 t - \varphi_0)} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\mathcal{E}}(\Delta\omega) e^{-i\Delta\omega t} d(\Delta\omega) \\ &= \tilde{\mathcal{E}}(t) e^{-i(\omega_0 t - \varphi_0)} \end{aligned} \quad (2.4)$$

mit der komplexen Einhüllenden

$$\tilde{\mathcal{E}}(t) = |\tilde{\mathcal{E}}(t)| e^{-i\varphi(t)} = A(t) e^{-i\varphi(t)}, \quad (2.5)$$

wobei $\varphi(t)$ die zeitliche Phase und $A(t)$ die Einhüllende des elektrischen Impulsfeldes beschreibt. Die Dauer eines Impulses ist als Halbwertsbreite τ_p (FWHM: „Full Width at Half Maximum“) der Intensitätseinhüllenden $I(t) \propto A(t)^2$ etwas willkürlich definiert. Die Funktion $|\tilde{\mathcal{E}}(\Delta\omega)|^2$ ist das um ω_0 frequenzverschobene Spektrum, wobei

$$\tilde{\mathcal{E}}(\Delta\omega) = \tilde{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{-i\varphi_0} \quad (2.6)$$

gilt.

Gleichung (2.4) beschreibt das elektrische Impulsfeld über die Separation der komplexen Einhüllenden $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ des Impulses von dessen rasch oszillierendem Anteil. Die Festlegung der Trägerfrequenz ω_0 über Gleichung (2.3) gewährleistet, dass sich die Einhüllende langer Impulse im Zeitfenster einer Feldschwingung nur langsam verändert. Bei Impulsen, deren Dauer nur noch wenige elektrische Feldzyklen umfasst, gilt diese Eigenschaft nicht mehr. Trotzdem ist die Beschreibung eines optischen Impulses über Gleichung (2.4) bis zu einer minimalen Impulsdauer von einem optischen Feldzyklus zulässig [25, 26]. Erst unterhalb eines optischen Feldzyklus führt eine Phasenverschiebung des elektrischen Feldes $\tilde{E}'(t) = \tilde{E}(t) e^{i\Delta\varphi}$ zu einer signifikanten Änderung der Trägerfrequenz $\omega'_0 \neq \omega_0$.

2.2 Impulsausbreitung und Formung

Die Ausbreitung ultrakurzer optischer Impulse als Pakete elektromagnetischer Wellen gehorcht den Maxwellgleichungen, aus denen die Formulierung der Wellengleichung für das elektrische Feld \vec{E} in homogenen dielektrischen Medien ohne freie Ladungsträger und elektrische Ströme folgt:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}. \quad (2.7)$$

Hier und im Folgenden ist $c_0 = 1/\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}$ die Vakuumlichtgeschwindigkeit mit der Permeabilitätskonstante μ_0 und der Dielektrizitätskonstante ε_0 .

2.2.1 Lineare Impulsausbreitung in dispersiven Medien

Die Polarisation der Materie ist in erster Näherung proportional zur einstrahlten elektrischen Feldstärke: $\vec{P}_L = \varepsilon_0 \tilde{\chi}^{(1)} \vec{E}$, wobei die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ für optische Eigenschaften wie Dispersion, Brechung und lineare Absorption verantwortlich ist. Zur Untersuchung linearer Impulsausbreitung ist es nötig, die Wellengleichung (2.7) nach Fouriertransformation in den Frequenzraum zu betrachten:

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}(z, \omega)}{\partial z^2} + k^2(\omega) \tilde{E}(z, \omega) = 0, \quad (2.8)$$

wobei hier der eindimensionale Fall einer Ausbreitung in z -Richtung mit der Wellenzahl

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c_0} n(\omega) \quad (2.9)$$

beschrieben ist. Neben geringer Absorption wurde von einem räumlich konstanten Brechungsindex $n(\omega)$ ausgegangen. Des Weiteren wird hier vorausgesetzt, dass sich die Polarisation des optischen Feldes während der Ausbreitung nicht ändert und damit eine skalare Beschreibung des Feldes genügt.

Die Formulierung des elektrischen Impulsfeldes über Gleichung (2.4) ermöglicht nun die Lösung der Wellengleichung (2.8). Durch die Abspaltung des schnell oszillierenden Anteils des komplexen elektrischen Feldes wird lediglich die Dynamik der Einhüllenden $\tilde{\mathcal{E}}(z, t)$ des Feldes untersucht. Einsetzen des Fourier-transformierten elektrischen Impulsfeldes

$$\tilde{E}(z, \omega_0 + \Delta\omega) = \tilde{\mathcal{E}}(z, \Delta\omega) e^{ik(\omega_0)z} \quad (2.10)$$

der Gleichung (2.6) mit der Frequenzabweichung $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ führt dann zur Differenzialgleichung

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{\mathcal{E}} - 2ik(\omega_0) \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}} - k(\omega_0)^2 \tilde{\mathcal{E}} + k(\omega_0 + \Delta\omega)^2 \tilde{\mathcal{E}} = 0 \quad (2.11)$$

für $\tilde{\mathcal{E}}(z, \Delta\omega)$. An dieser Stelle folgt aus der Annahme einer Impulseinhüllenden, die sich über einer lichtoptischen Periode bzw. über eine Wellenlänge $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0$ nur geringfügig verändert (SVEA: „Slowly Varying Envelope Approximation“), eine wesentliche Vereinfachung der Differenzialgleichung (2.11). Unter der Voraussetzung

$$\left| \frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}}{\partial z} \right| \ll k(\omega_0) |\tilde{\mathcal{E}}|, \quad \text{bzw.} \quad \left| \frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}}{\partial t} \right| \ll \omega_0 |\tilde{\mathcal{E}}| \quad (2.12)$$

können Terme höherer Ableitung, wie $\partial^2 \tilde{\mathcal{E}} / \partial z^2$, in Gleichung (2.11) vernachlässigt werden. Numerische Simulationen zeigen, dass diese Approximation erstaunlich gut erfüllt ist, auch wenn nur noch ein paar Perioden der elektromagnetischen Welle unter der Einhüllenden liegen.

Mit $\Delta k \approx k(\omega_0 + \omega) - k(\omega_0)$ und $\Delta k \ll k$ lässt sich nun eine vereinfachte Wellengleichung für die Impulseinhüllende aufstellen:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}}(z, \Delta\omega) + i\Delta k \tilde{\mathcal{E}}(z, \Delta\omega) = 0, \quad (2.13)$$

deren einfachen Lösung

$$\tilde{\mathcal{E}}(z, \Delta\omega) = \tilde{\mathcal{E}}(0, \Delta\omega) e^{i\Delta k z} \quad (2.14)$$

lautet. Gleichung (2.14) beschreibt den Einfluss der Dispersion auf die spektrale Phase des Impulses, ohne dass hierbei die spektrale Amplitude bzw. das Spektrum des Impulses modifiziert wird. So ändert sich dessen spektrale Phase während der Propagation des Impulses über eine Länge L in z -Richtung um den Betrag

$$\varphi(\omega) = \frac{\omega}{c_0} n(\omega) L = k(\omega) L. \quad (2.15)$$

Die Auswirkung dispersiver Einflüsse auf die zeitliche Form eines optischen Impulses wird verständlich, wenn man die Taylorentwicklung der spektralen Phase am Ort einer bestimmten Kreisfrequenz, wie z.B. der Trägerfrequenz ω_0 , betrachtet

$$\varphi(\omega) = \varphi_0 + \underbrace{\frac{d\varphi}{d\omega} \Big|_{\omega_0}}_{\text{GD}} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \underbrace{\frac{d^2\varphi}{d\omega^2} \Big|_{\omega_0}}_{\text{GDD}} (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \underbrace{\frac{d^3\varphi}{d\omega^3} \Big|_{\omega_0}}_{\text{TOD}} (\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.16)$$

An Stelle der hier auftretenden Entwicklungskoeffizienten werden in der Literatur häufig die Ausbreitungskonstanten

$$\beta_{i=0,1,2,\dots} = \frac{1}{i!} \left. \frac{d^i k(\omega)}{d\omega^i} \right|_{\omega=\omega_0} \quad (2.17)$$

verwendet, wobei $\beta_0 = k(\omega_0) = \omega_0/v_p$ die Phasengeschwindigkeit v_p enthält, mit der die Zentralfrequenz ω_0 propagiert, während β_1 der Kehrwert der Gruppengeschwindigkeit $v_g(\omega_0)$ ist. Das Einsetzen der Taylorentwicklung (2.16) in die Impulsleichung (2.4) verdeutlicht die Bedeutung der einzelnen Entwicklungsterme:

$$\begin{aligned} \tilde{E}(t) &\propto e^{-i(\omega_0 t - \varphi_0)} \\ &\times \int_{-\infty}^{+\infty} |\tilde{E}(\omega_0 + \Delta\omega)| \cdot \exp \left[-i\Delta\omega \left(t - \left. \frac{d\varphi}{d\omega} \right|_{\omega_0} \right) + \frac{1}{2} i\Delta\omega^2 \left. \frac{d^2\varphi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} + \right] d(\Delta\omega). \end{aligned} \quad (2.18)$$

Der Exponentialterm vor dem Integral beschreibt die Trägerwelle und das Integral selber die Einhüllende des elektischen Feldes im Zeitbereich. Der Anteil φ_0 der Taylorentwicklung legt somit die absolute Phasenlage der Trägerwelle bezüglich eines willkürlichen Zeitnullpunktes fest. Alle höheren Phasenterme beschreiben dispersive Effekte der jeweiligen Ordnung bei der Kreisfrequenz ω_0 .

Im Exponentialausdruck des Integrals der Gleichung (2.18) wird deutlich, dass der lineare Phasenterm zu einer zeitlichen Verschiebung der Impulseinhüllenden führt, deren Form jedoch unbeeinflusst lässt. Die lokale Steigung der spektralen Phase wird daher als Gruppenverzögerung (GD: „Group Delay“) bezeichnet:

$$\text{GD}(\omega) = \frac{d\varphi}{d\omega}, \quad \text{wobei} \quad (2.19)$$

$$\text{GD}(\omega_0) = \left. \frac{d\varphi}{d\omega} \right|_{\omega_0} = \frac{L}{v_g(\omega_0)} = L \left(\frac{1}{v_p(\omega_0)} + \frac{\omega_0}{c_0} \left. \frac{dn(\omega)}{d\omega} \right|_{\omega_0} \right). \quad (2.20)$$

Unter der Annahme, dass der Impuls ein dispersives Medium der Länge L durchläuft, beschreibt $\text{GD}(\omega)$ die Zeit, die eine Wellengruppe mit der Zentralfrequenz ω zur Propagation durch dieses Medium benötigt. Sind Gruppen- und Phasengeschwindigkeit im Medium verschieden [$v_g(\omega_0) \neq v_p(\omega_0)$], ändert sich die absolute Phasenlage des Trägers relativ zur Einhüllenden im Verlauf der Propagation. Der Phasenanteil $\Delta\omega d\varphi/d\omega$ wird daher auch als der „Carrier-Envelope Offset“ (CEO) des Impulses bezeichnet, wofür sich in

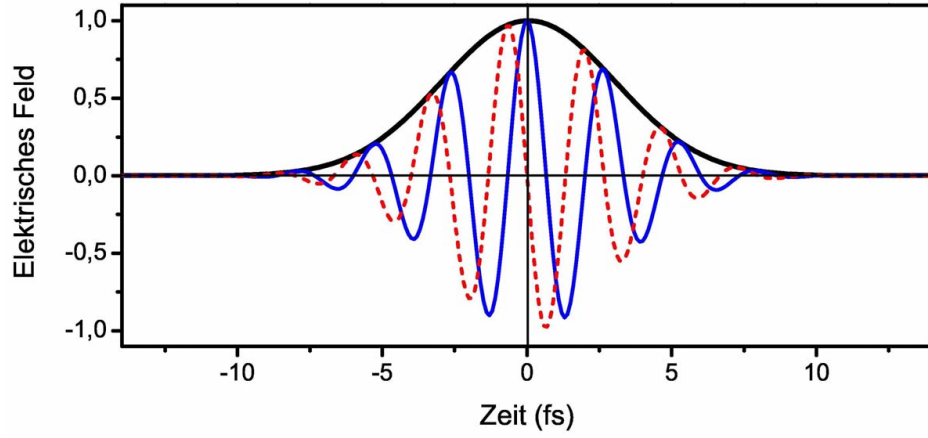


Abbildung 2.1: Zwei mögliche elektrische Feldverläufe eines Gaußimpulses mit einer Dauer von 5 fs (FWHM) und einer Zentralwellenlänge von 800 nm mit unterschiedlicher absoluter Phase (dünne blaue Linie: $\varphi_{\text{abs}} = 0$; rote gestrichelte Linie: $\varphi_{\text{abs}} = \pi/2$). Die Einhüllende des Feldes ist als dicke durchgezogene Linie eingezeichnet.

der Literatur auch der Begriff „absolute Phase“ etabliert hat [22].

Abbildung 2.1 stellt zwei mögliche Feldverläufe eines 5 fs Gauß-Impulses dar, deren absolute Phase sich um einen Betrag $\pi/2$ unterscheiden. Im Falle optischer Impulse, die nur noch wenige Zyklen des elektrischen Feldes andauern, führt die Abweichung vom Kosinus-förmigen Feldverlauf ($\varphi_{\text{abs}} = 0$) zu einer Absenkung der Spitzenfeldstärke, was bei der Ausnutzung nichtlinearer Effekte hoher Ordnung signifikante Auswirkungen hat. In diesem Bereich extrem kurzer Impulsdauern ist damit auch der Wert der absoluten Phase am Ort der Wechselwirkung ein wichtiger Impulsparameter [8], und es existieren bereits Verfahren zur Bestimmung dieser Größe [27, 28, 29]. Aber auch die Stabilisierung der absoluten Phase im Impulszug ist eine Errungenschaft der letzten Jahre [30, 31, 32].

Bei dem Impuls der Abbildung 2.1 treten sämtliche Frequenzkomponenten zum selben Zeitpunkt auf, was einem linearen spektralen Phasenverlauf $\varphi(\omega)$ bzw. $\text{GD}(\omega) = \text{konst.}$ entspricht. Ein solcher Impuls wird dann als Fourier- bzw. transformlimitiert bezeichnet. Terme höherer Ordnung in der Taylorentwicklung der Gleichung (2.16) führen zu Krümmungen in der spektralen Phase und damit zu einer frequenzabhängigen Gruppenverzögerung $\text{GD}(\omega)$. Damit kommt es jedoch zu einer zeitlichen Umverteilung der verschiedenen Frequenzkomponenten des Impulses, was zu einer kontinuierlichen Verände-

rung der Impulsform im Verlauf der Propagation führt. Es sei an dieser Stelle herausgestellt, dass mit den in dieser Arbeit vorgestellten, sog. „vollständigen“ Impulscharakterisierungsverfahren lediglich die im Folgenden beschriebenen Phasenanteile höherer Ordnung gemessen werden können. Die ersten beiden Terme der Entwicklung (2.16) bleiben hingegen unbestimmt.

Den stärksten Einfluss auf die Form eines ultrakurzen optischen Impulses hat die Dispersion der Gruppenverzögerung (GDD: „Group Delay Dispersion“):

$$\text{GDD}(\omega) = \frac{d \text{GD}}{d\omega} = \frac{d^2\varphi}{d\omega^2}. \quad (2.21)$$

Dieser Beitrag, der im quadratischen Term der Taylorentwicklung [Gleichung (2.16)] auftaucht, bewirkt eine zeitliche Verzögerung der vorhandenen Frequenzkomponenten bezüglich der Trägerfrequenz ω_0 . Diese Verzögerung skaliert linear mit dem Abstand $\Delta\omega$ der jeweiligen Frequenzkomponente zu ω_0 . In der Zeitdarstellung des Impulses [siehe Gleichung (2.5)] verursacht dies eine lineare Abhängigkeit der Kreisfrequenz über die Dauer des Impulses, was als linearer Frequenzchirp bezeichnet wird. Abbildung 2.2 zeigt die Auswirkung einer Dispersion von $\text{GDD} = 40 \text{ fs}^2$ auf den transformlimitierten Impuls der Abbildung 2.1. Die frequenzabhängige Verzögerung des Lichtes streckt den ursprünglich 5 fs langen Impuls auf 23 fs und führt einen positiven linearen Chirp ein, der in Abbildung 2.2 b) gestrichelt eingezeichnet ist. Die lineare Frequenzabhängigkeit der Gruppenverzögerung spiegelt sich auch in der parabelförmigen spektralen Phase der Abbildung 2.2 c) wider. Im Falle eines Gaußimpulses besitzt dann auch die zugehörige Impulsphase $\varphi(t)$ im Zeitraum eine parabelförmige Krümmung. Der Begriff des Chirps wird über die zeitliche Änderung der Trägerfrequenz

$$\omega(t) = \frac{d\varphi(t)}{dt} + \omega_0 \quad (2.22)$$

eines Impulses definiert. Damit ändert sich im Falle eines nichtlinearen zeitlichen Phasenverhaltens die Schwingungsdauer des elektrischen Impulsfeldes als Funktion der Zeit, wie dies auch in Abbildung 2.2 a) zu sehen ist.

Eine Dispersion dritter Ordnung (TOD: „Third Order Dispersion“), wie sie durch den kubischen Term der Taylorentwicklung [Gleichung (2.16)] beschrieben wird, erzeugt eine asymmetrische Störung der zeitlichen Impulsstruktur [siehe z.B. Abbildung A.1 c) in Anhang A]. Bezüglich der dispersionsbedingten Modifikation der Impulsform kann man vereinfacht sagen, dass gerade Ordnungen der Taylorentwicklung der spektralen Phase zu zeitlich symmetrischen Störungen der Impulsform führen, wohingegen ungerade Ordnungen

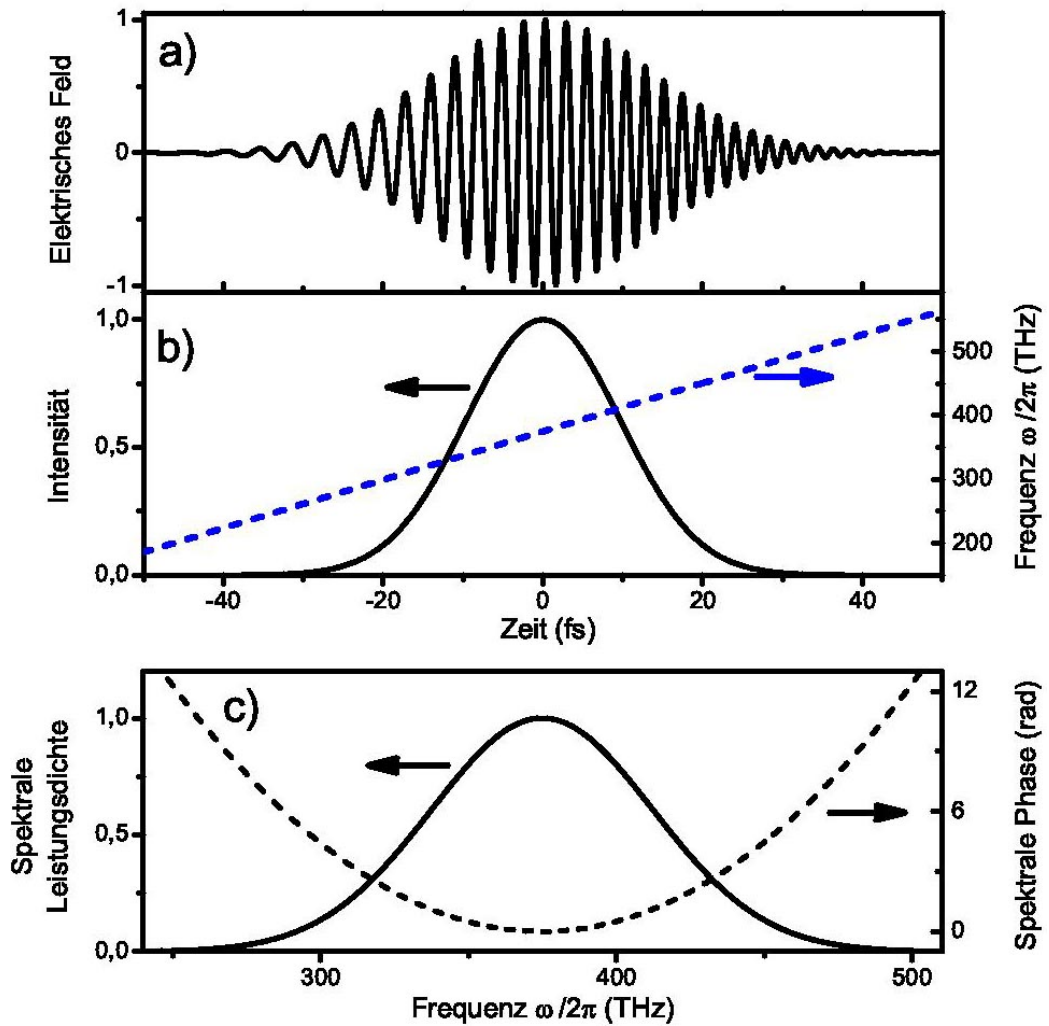


Abbildung 2.2: Darstellung eines gechirpten Impulses mit einer Zentralwellenlänge bei 800 nm im Zeit- und Frequenzraum. a) Elektrisches Feld eines ursprünglich ungechirpten 5 fs Impulses (siehe Abb. 2.1) nach dispersiver Streckung ($GDD = 40 \text{ fs}^2$ entspricht ca. 1 mm BK7 Glas) auf 23 fs. b) Intensitätseinhüllende des elektrischen Feldes (durchgezogene Linie). Der zeitliche Verlauf der Trägerfrequenz (Chirp) ist gestrichelt eingezeichnet. Die Dispersion transparenter Medien führt in diesem Spektralbereich dazu, dass geringe Frequenzen den hohen Frequenzanteilen vorausseilen. c) Spektrale Leistungsdichte bzw. Spektrum (durchgezogene Linie) und spektrale Phase (gestrichelte Linie). Der lineare Anteil der Phase wurde bereits abgezogen.

eine asymmetrische Störung zur Folge haben. In dieser Strenge gilt diese Aussage allerdings nur für symmetrische Spektren.

2.2.2 Nichtlineare Impulsausbreitung in isotropen Medien

Die bei der Anwendung ultrakurzer Laserimpulse auftretenden hohen Feldstärken verursachen eine Anharmonizität im Potenzial gebundener Elektronen. Bei Intensitäten $< 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ist diese Störung noch klein genug, dass sich der Ansatz einer Taylorentwicklung der Polarisierung rechtfertigt:

$$P_i = \underbrace{\varepsilon_0 \chi_{ij}^{(1)} E_j}_{=P_L} + \underbrace{\varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \varepsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots}_{=P_{NL}}. \quad (2.23)$$

Die nichtlineare Impulsausbreitung berücksichtigt neben den beschriebenen linearen Prozessen (P_L) auch intensitätsabhängige Effekte, die über die Polarisierungsterme P_{NL} höherer Ordnung in die Wellengleichung (2.7) eingehen.

Nichtlineare optische Wechselwirkungen zweiter Ordnung (bzw. gerader Ordnung) treten nur in anisotropen Kristallen auf, deren Struktur inversionssymmetrisch ist. Ohne diese Eigenschaft verschwindet der $\chi^{(2)}$ -Beitrag, der für nichtlineare Effekte wie der Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG: „Second-Harmonic Generation“) einer Laserfrequenz, der Summen- und Differenzfrequenzerzeugung (SFG und DFG), der optischen parametrischen Oszillation (OPO) und der optischen Gleichrichtung („Optical Rectification“) verantwortlich ist.

In der folgenden Beschreibung nichtlinearer Impulsausbreitung werden lediglich Prozesse dritter Ordnung einbezogen, die zu einer intensitätsbedingten Änderung des Brechungsindex führen und damit auf die Impulsphase wirken. Dies ist der optische Kerr-Effekt, beruhend auf der Wirkung gebundener Elektronen, während die Wirkung freier Elektronen als Plasmanichtlinearität berücksichtigt wird. Beide Mechanismen dominieren die Femtosekundenimpulsausbreitung im Edelgas.

Optischer Kerr-Effekt und Selbstphasenmodulation

Nichtlineare Beiträge zur Polarisierung, wie sie durch den dritten Term der Taylorentwicklung (2.23) berücksichtigt werden, können sowohl bei der dritten Harmonischen 3ω als auch bei der fundamentalen Laserfrequenz ω sowie den Frequenzen der Mischprodukte dreier beteiligter elektrischer Felder auftreten. Im ersten Fall kommt es zur Erzeugung der dritten Harmonischen

einer eingestrahnten Laserfrequenz (THG: „Third-Harmonic Generation“), während der zweite Fall zu einem nichtlinearen Anteil des Brechungsindex führt:

$$n(\vec{r}, t) = n_0 + n_2 I(\vec{r}, t), \quad (2.24)$$

wobei n_0 den linearen Anteil des Brechungsindex angibt und $n_2 \propto \chi^{(3)}/n_0^2$ als nichtlinearer Brechungsindex definiert ist, der als optische Konstante die Stärke der optischen Nichtlinearität charakterisiert [7]. Die Abhängigkeit des Brechungsindex n von der Intensität $I(\vec{r}, t)$ wird als optischer Kerr-Effekt bezeichnet, dessen Reaktionszeit bei einer Intensitätsvariation aus den Frequenzen der optischen Übergänge im Dielektrikum auf < 1 fs abgeschätzt werden kann [8]. Orts- und Zeitabhängigkeit der Intensität eines ultrakurzen Impulses verursachen zwei wichtige Effekte, die als Selbstfokussierung und Selbstphasenmodulation (SPM) bezeichnet werden.

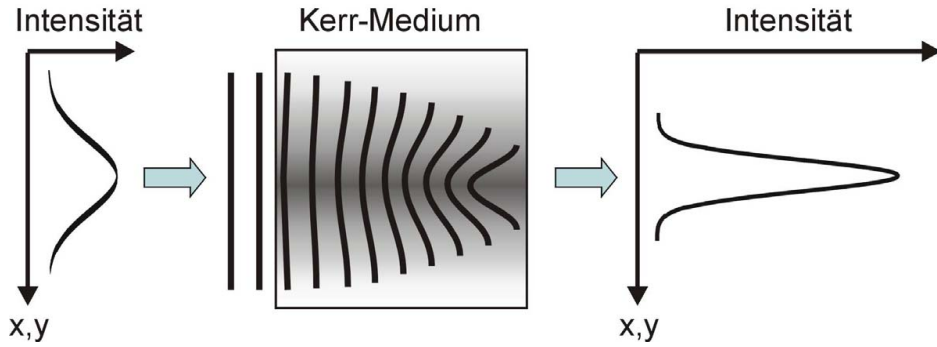


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Selbstfokussierung eines Gauß-Strahls im Kerr-Medium ($n_2 > 0$). Ein intensitätsabhängiger Brechungsindex reduziert die Phasengeschwindigkeit am Ort hoher Intensität. Dadurch krümmen sich die anfangs ebenen Wellenfronten im Kerr-Medium zunehmend.

Selbstfokussierung:

Der Prozess der Selbstfokussierung eines Laserstrahls in einem Kerr-Medium ist schematisch in Abbildung 2.3 illustriert. Gemäß Gleichung (2.24) folgt der Betrag des Brechungsindex $n(x, y)$ räumlich dem Intensitätsstrahlprofil und bildet im Falle eines Gauß-förmigen Profils eine fokussierende Indexlinse im Medium aus. Es kann eine kritische Leistung P_{crit} abgeschätzt werden, unterhalb derer ein Kollaps des Strahls durch Selbstfokussierung noch durch die Beugung aufgehalten werden kann. Diese Leistung ist unabhängig vom Strahldurchmesser und kann für den Fall eines Gauß-förmigen Strahlprofils über

$$P_{\text{crit}} = \alpha \frac{\lambda^2}{4\pi n_0 n_2} \quad (2.25)$$

mit dem materialunabhängigen Parameter $\alpha = 1,84$ berechnet werden [7, 33].

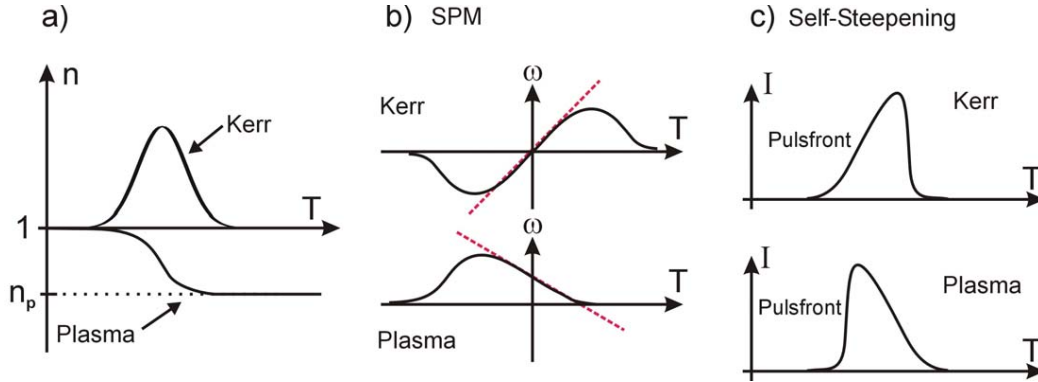


Abbildung 2.4: Schema der dominanten nichtlinearen Effekte während der Lichtführung im Edelgas bei einer Laserleistung im Bereich der kritischen Leistung zur Selbstfokussierung P_{crit} . a) Einfluss gebundener Elektronen (Kerr-Effekt) und freier Elektronen (Plasma) auf den Brechungsindex $n \approx 1$ von Edelgasen im sichtbaren Spektralbereich. Die Auftragung erfolgt auf der sich mit dem Laserimpuls mitbewegenden Zeitachse $T = t - z/v_g$. b) Die Auswirkung von Kerr-Effekt und Plasma auf die Phasengeschwindigkeit führt zu einer Verschiebung der zeitlichen Impulsphase $\varphi(T)$ und damit zu einem positiven Chirp, wenn die Selbstphasenmodulation (SPM) auf gebundenen Elektronen beruht, und zu einem negativen Chirp im Falle freier Elektronen (linearer Chirp: gestrichelte Linie). c) Die Auswirkung von Kerr-Effekt und Plasma auf die Gruppengeschwindigkeit bewirkt eine entsprechende zeitliche Asymmetrie in der Impulsform und die Ausbildung von steilen Schockfronten.

Selbstphasenmodulation:

Bei der Ausbreitung eines gepulsten Laserstrahls konstanter Strahlfläche in einem Kerr-Medium der Länge L beträgt der nichtlineare Anteil der Phasenverschiebung:

$$\varphi_{\text{nl}}(t) = -\frac{\omega_0}{c_0} n_2 I(t) L. \quad (2.26)$$

Somit moduliert der zeitliche Intensitätsverlauf $I(t)$ des Impulses auch dessen zeitliche Phase, was allgemein als Selbstphasenmodulation (SPM) bezeichnet wird. Die Mittenfrequenz des Impulses variiert damit zeitabhängig gemäß:

$$\omega(t) = \omega_0 + \frac{d\varphi_{\text{nl}}(t)}{dt} = \omega_0 - \frac{\omega_0}{c_0} n_2 \frac{dI(t)}{dt} L. \quad (2.27)$$

Bei einem Fourier-limitierten Impuls erfolgt durch SPM eine Absenkung der Frequenz an der Impulsfront, da $dI(t)/dt > 0$, und entsprechend eine Frequenzerhöhung an der hinteren Impulsflanke. Im Verlauf der Propagation

im Kerr-Medium vergrößern neu erzeugte Frequenzkomponenten kontinuierlich die spektrale Bandbreite des Impulses. Dieses Verhalten ist in Abbildung 2.4 b) schematisch dargestellt, während Abbildung 2.4 a) das Verhalten des intensitätsabhängigen Brechungsindex im Falle eines Edelgases als Kerr-Medium skizziert. Über den zentralen, intensitätsstarken Bereich des Impulses dominiert nun ein positiver linearer Chirp.

„Self-Steepening“ - Ausbildung von Schockfronten:

Die Auswirkung einer intensitätsabhängigen Indexänderung $\Delta n(I)$ auf die Gruppengeschwindigkeit $v_g = v_g(I)$ führt zu dem Effekt des sog. „Self-Steepening“ [34, 35]. Spektralkomponenten hoher Intensität propagieren bei einer intensitätsabhängigen Erhöhung des Brechungsindex langsamer als solche mit niedriger Intensität. Die Hinterflanke des Impulses wird dadurch im Verlauf der Impulsausbreitung durch das Kerr-Medium immer steiler [siehe Abbildung 2.4 c)]. In Kombination mit der auf dem Kerr-Effekt basierenden SPM entstehen nun aufgrund des starken negativen Intensitätsgradienten bevorzugt hochfrequente Spektralkomponenten [36].

Die nichtlineare Schrödingergleichung

Da nichtlineare Effekte in der Regel starke Auswirkungen auf das Impulsspektrum haben, ist es hier nötig, die Impulsausbreitung im Zeitraum zu berechnen. Ausgangspunkt der Aufstellung einer nichtlinearen Bewegungsgleichung der Impulseinhüllenden $\tilde{\mathcal{E}}$ ist die vereinfachte, lineare Wellengleichung (2.13), deren Fouriertransformierte die Form:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}}(z, t) - iD\tilde{\mathcal{E}}(z, t) = \frac{1}{2}\alpha\tilde{\mathcal{E}} \quad (2.28)$$

annimmt und deren Zeitachse ($t \rightarrow t - \beta_1 z$) sich mit dem Impuls mitbewegt. Ein hier zusätzlich eingeführter Term auf der rechten Seite der Gleichung (2.28) umfasst Verluste durch Absorption. Der Dispersionsoperator D ist über die Ausbreitungskonstanten der Gleichung (2.17) wie folgt definiert:

$$D = \sum_{n=2} \frac{\beta_n}{n!} \left(i \frac{\partial}{\partial t} \right)^n. \quad (2.29)$$

Die Berücksichtigung eines instantanen, frequenzunabhängigen Kerr-Effektes führt dann zur nichtlinearen Schrödingergleichung (NSE):

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}}(z, t) = +iD\tilde{\mathcal{E}} + i\frac{\omega_0}{c_0}n_2|\tilde{\mathcal{E}}|^2\tilde{\mathcal{E}} - \frac{1}{2}\alpha\tilde{\mathcal{E}}. \quad (2.30)$$

In einem ersten Schritt, die Anwendbarkeit der Gleichung (2.30) auf kürzere Impulsdauern auszudehnen, wird der Effekt des „Self-Steepening“ über die erste zeitliche Ableitung des langsam veränderlichen Anteils der nichtlinearen Polarisation P_{NL} eingeführt und in Kombination mit dem Kerr-Effekt durch den Operator

$$T = 1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} \quad (2.31)$$

ausgedrückt:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}}(z, t) = +iD\tilde{\mathcal{E}} + i\frac{\omega_0}{c_0}n_2T|\tilde{\mathcal{E}}|^2\tilde{\mathcal{E}} - \frac{1}{2}\alpha\tilde{\mathcal{E}}. \quad (2.32)$$

Während für Gleichung (2.30) analytische Lösungen in Form von Solitonen existieren können, ist man im Falle der verallgemeinerten nichtlinearen Gleichung (2.32) der komplexen Impulsenhüllenden (NEE: „Nonlinear Envelope Equation“ [25]) auf numerische Ansätze zur Untersuchung nichtlinearer Impulsausbreitung angewiesen. Eines dieser Verfahren ist die sog. „Split-Step“-Fourier-Methode, die von der Näherung ausgeht, dass lineare und nichtlineare Einflüsse auf das elektrische Feld entlang einer kleinen Ausbreitungslänge $2h$ als unabhängig voneinander angesehen werden können. Die Ausbreitungsstrecke des Impulses wird dann in eine Vielzahl von Segmenten der Länge h unterteilt, an deren Grenzen eine Fouriertransformation der Gleichung (2.32) in den jeweils komplementären Raum vorzunehmen ist. Anschließend werden ausschließlich lineare Impulsformungseffekte über die Bereiche zwischen $z+2Nh$ und $z+(2N+1)h$ in der Frequenzdomäne berücksichtigt, wohingegen die nichtlinearen Einflüsse in der Zeitdomäne im Ausbreitungsabschnitt zwischen $z+(2N+1)h$ und $z+(2N+2)h$ mit $N = 0, 1, 2, \dots$ berechnet werden.

Eine weitere Verallgemeinerung stellt die Berücksichtigung räumlicher Effekte, wie Beugung und Selbstfokussierung, dar, die eine dreidimensionale Beschreibung der Impulsausbreitung in z -Richtung erfordert:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}}(\vec{r}_\perp, z, t) = \frac{i}{2k(\omega_0)} T^{-1} \nabla_\perp^2 \tilde{\mathcal{E}} + iD\tilde{\mathcal{E}} + i\frac{\omega_0}{c_0}n_2T|\tilde{\mathcal{E}}|^2\tilde{\mathcal{E}} - \frac{1}{2}\alpha\tilde{\mathcal{E}}, \quad (2.33)$$

wobei $\nabla_\perp^2 = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$ der transversale Laplace-Operator ist. Der Operator T^{-1} steht für sog. Raum-Zeit-Fokussierungseffekte („Space-Time Focusing“) und berücksichtigt z.B. die größere Strahldivergenz niedrigerer Frequenzkomponenten.

Numerische Simulationen zeigen, dass eine genäherte Beschreibung der nichtlinearen Impulsausbreitung über Gleichung (2.33) bis zu Impulsdauern von

wenigen optischen Zyklen zu richtigen Ergebnissen führen kann. Der Grund hierfür liegt in der Einführung der Operatoren T, T^{-1} bzw. einer modifizierten Bedingung für die Impulsausbreitung

$$\left| \frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}}{\partial z} \right| \ll k(\omega_0) |\tilde{\mathcal{E}}|, \quad \left| \frac{\beta_0 - \omega_0 \beta_1}{\beta_0} \right| \ll 1, \quad (2.34)$$

die bei der Ableitung der Gleichung (2.33) aus der Wellengleichung (2.7) benutzt werden kann. Gleichung (2.34) besagt, dass sich sowohl die Einhüllende $\tilde{\mathcal{E}}$ als auch die absolute Phasenlage der Trägerwelle zur Impulseinhüllenden über eine Propagationsstrecke $z = 2\pi c/\omega_0$ nur wenig ändern darf (SEWA: „Slowly-Evolving-Wave Approximation“ [25]).

Der Einfluss freier Ladungsträger

In Hinblick auf eine vollständige Beschreibung der Impulspropagation in einem Edelgas muss der Einfluss freier Elektronen auf den Brechungsindex berücksichtigt werden. Diese werden bei Intensitäten oberhalb von ca. $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ durch einsetzende Multiphotonenionisation gebildet.

Freie Elektronen und ionisierte Atomrümpfe bilden ein dünnes Plasma, dessen Brechungsindex

$$n_p = \sqrt{1 - (\omega_p/\omega)^2} \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (2.35)$$

nach dem Drude-Modell von der Plasmafrequenz

$$\omega_p = e \sqrt{\frac{\varrho_e}{\varepsilon_0 m_e}} \quad (2.36)$$

abhängt, wobei die Größen m_e und e für Masse und Ladung des Elektrons stehen. Die Dichte der freien Elektronen ϱ_e des Gases kann z.B. über die Ammosov-Delone-Krainov (ADK) Theorie [37, 38] berechnet werden. Eine auf freien Elektronen beruhende Änderung des Brechungsindex nach Gleichung (2.35) kann als weiteres Korrekturglied $\propto -i\varrho_e \tilde{\mathcal{E}}/(2\varrho_c)$ mit der kritischen Plasmadichte $\varrho_c = m_e \varepsilon_0 \omega_0^2 / e^2$ in die NEE [Gleichung (2.33)] integriert werden [39]:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}}(\vec{r}_\perp, z, t) = \frac{i}{2k(\omega_0)} T^{-1} \nabla_\perp^2 \tilde{\mathcal{E}} + iD \tilde{\mathcal{E}} + i \frac{\omega_0}{c_0} n_2 T |\tilde{\mathcal{E}}|^2 \tilde{\mathcal{E}} - i \frac{k(\omega_0)}{2n_0^2 \varrho_c} T^{-1} \varrho_e \tilde{\mathcal{E}} - \frac{1}{2} \alpha \tilde{\mathcal{E}}. \quad (2.37)$$

Der Einfluss freier Elektronen hat nach Gleichung (2.35) eine Absenkung des Brechungsindex eines Edelgases zur Folge [siehe Abbildung 2.4 a)]. Da die Rekombination der Elektronen auf einer Zeitskala von wenigen 10 fs vernachlässigbar ist, nimmt die Dichte der freien Ladungsträger im Verlauf der Impulsdauer zu, solange die Zahl der neutralen Gasatome überwiegt. Die kontinuierliche Absenkung des Plasmaindex während dieser Zeitspanne führt ähnlich wie beim Kerr-Effekt zu räumlichen und spektralen Modifikationen des Impulses im Verlauf der Propagation. Aufgrund des Gauß-förmigen Strahlprofils variiert die Elektronendichte auch senkrecht zur Ausbreitungsrichtung und bildet eine defokussierende Indexlinse im Plasma aus. Die zeitliche Variation des Brechungsindex im selbsterzeugten Plasma ruft eine Phasenverschiebung (Plasma-SPM) hervor, die das Impulsspektrum vorwiegend auf der hochfrequenten Seite verbreitert [siehe Abbildung 2.4 b)]. Eine Untersuchung der Plasma-Gruppenlaufzeitdispersion $d^2k/d\omega^2$ mit $k = \frac{\omega}{c_0} n_p$ im sichtbaren Spektralbereich führt zu negativen Werten. Der resultierende negative Chirp des im Plasma propagierenden Impulses ist in Abbildung 2.4 b) skizziert. Auch propagiert die Hinterflanke des Impulses im selbsterzeugten Plasma schneller als der Rest des Impulses, da hier der Brechungsindex seinen geringsten Wert annimmt. Dadurch kommt es zu einer Aufsteilung der Impulsfront [siehe Abbildung 2.4 c)]. In Kombination mit der Kerr-SPM führt dies ebenfalls zu einer Verbreiterung des Impulsspektrums auf der hochfrequenten Seite.

2.3 Methoden der Erzeugung von Sub-10-fs-Impulsen

An dieser Stelle soll ein kurzer Überblick über aktuelle experimentelle Techniken geboten werden, die im sichtbaren Spektralbereich die momentan kürzesten Impulse mit einer Dauer von weniger als 10 fs hervorbringen.

Voraussetzung für die Erzielung solch kurzer Impulsdauern ist die Erzeugung eines kohärenten Spektrums, dessen Breite $\Delta\nu$ nicht mehr vernachlässigbar gegenüber dem Betrag der Trägerfrequenz ($\omega_0/2\pi \approx 375$ THz im Falle des Ti:Saphir Lasers) ist. Das Bandbreitenprodukt $\Delta\nu \tau_p \approx 1/\pi$ legt hierbei die minimale spektrale Bandbreite eines ultrakurzen Impulses der Dauer τ_p fest. Spektren von über einer Oktave Bandbreite, die einen Großteil des sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereichs abdecken ($\Delta\nu \approx 300$ THz), müssen für die kürzesten optischen Impulse mit einer Dauer unter 4 fs bereitgestellt werden. Momentan existieren zwei verschiedene Methoden der Erzeugung

solch kurzer optischer Impulse: entweder direkt aus einem modengekoppelten Ti:Saphir-Oszillator oder durch externe Kompression, basierend auf einem nachgeschalteten nichtlinearen Prozess der spektralen Verbreiterung des Impulses. Neben der Entdeckung der Modenkopplung über die praktisch instantane Erzeugung einer Kerr-Linse im Festkörper-Lasermedium und deren Ausnutzung als schneller optischer Schalter (KLM: „Kerr-Lens Mode Locking“ [40]) ist die Kompensation der verschiedenen Ordnungen der eingeführten Dispersion eine weitere wichtige Voraussetzung für die Erzielung einer minimalen Impulsdauer (näheres siehe Kapitel 4).

Die Erzeugung eines ultrakurzen optischen Impulses direkt aus einem Laseroszillator erfordert eine spektrale Verstärkungsbandbreite des Lasermaterials, die der Bandbreite des Impulses entspricht. In den 1980er Jahren wurde die Ultrakurzpulstechnologie ($\tau_p < 100$ fs) von Farbstofflasern und der „Colliding-Pulse“-Modenkopplung dominiert [41]. Eine Kombination dieser Technik mit einer spektralen Verbreiterung des Laserimpulses durch Selbstphasenmodulation in einer „Single-Mode“-optischen Faser führte bereits 1987 zu Impulsdauern von 6 fs [42]. In den Jahren nach 1990 wurden die Farbstofflaser durch KLM Ti:Saphir-Laser verdrängt, deren Verstärkungsbandbreite einen Spektralbereich von über 400 nm zwischen ca. 670 nm und 1080 nm umfasst. Der Effekt der Selbstfokussierung im KLM Lasermedium führt zur erhöhten Transmission durch eine physikalische Blende. Dies zwingt den Laser in einen gepulsten Betriebszustand und verursacht eine Impulsverkürzung, wie sie in der Theorie der Modenkopplung basierend auf schnellen sättigbaren Absorbern beschrieben wird [43]. Während KLM ein notwendiger Prozess zur Stabilisierung der Modenkopplung und zur Rauschunterdrückung im Zeitraum zwischen den Impulsen ist, kann ein weiterer Effekt die Ausbildung eines Solitons oder Soliton-artigen Impulses die Impulsformung dominieren. Solitonenbildung entsteht im Wechselspiel zwischen Selbstphasenmodulation und Gruppenlaufzeitdispersion innerhalb des Resonators, insbesondere, wenn sich die dispersiven Beiträge der nichtlinearen Effekte und der optischen Komponenten im Resonator gegenseitig aufheben. Rekordimpulsdauern von 5 fs bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm direkt aus einem Ti:Saphir Oszillator konnten so bereits demonstriert werden [44]. Durch gezielte externe Manipulation der spektralen Impulsphase konnte kürzlich die zeitliche Struktur eines solchen Oszillatorimpulses auf eine FWHM-Dauer von lediglich 3,7 fs reduziert werden [45].

Alle weiteren ähnlich beeindruckenden Resultate von Rekordimpulsdauern wurden bisher über externe Nachkompression eines Oszillatorimpulses erzielt. Die Kombination aus Ti:Saphir Lasertechnik und spektraler Verbrei-

terung in einer nachgeschalteten „Single-Mode“ optischen Faser konnte den Rekord von 1987 unterbieten und Impulsdauern bis herunter zu 4,5 fs liefern [46, 47]. Zusätzlich ermöglichte die Entwicklung der CPA-Technik (CPA: „Chirped-Pulse Amplification“ [48]) ab 1985 die Verstärkung ultrakurzer Impulse zu bisher unerreichten Spitzenleistungen. Für eine externe Kompression von Gigawatt-Impulsen musste ein nichtlineares Medium mit hoher Zerstörschwelle gefunden werden. Über eine Kombination aus Edelgas-gefüllten, hohlen Wellenleitern und nachgeschalteter, z.T. adaptiver Dispersionskontrolle können optische Impulse im μJ -Energiebereich auf Impulsdauern von bis zu 3 fs komprimiert werden [49, 50, 51, 3]. Für einen detaillierteren Überblick sei auf Kapitel 4 verwiesen.

Zur Impulskompression im ultravioletten Spektralbereich kommen Hohlfaserkompressoren zum Einsatz, deren Mechanismus der spektralen Impulsverbreiterung auf Kreuzphasenmodulation im Edelgas (z.B. Argon) [52] oder auf der in einem Raman-aktiven Gas (z.B. SF_6) durch zuvor kohärent angeregte molekulare Bewegungen (Vibration oder Rotation) verursachten Phasenmodulation beruhen [53]. Mit der zuletzt aufgeführten Methode wurden bereits Impulsdauern unter 4 fs bei einer Zentralwellenlänge von 400 nm erzielt [54].

Ein anderer Weg wird bei der Ausnutzung des Effektes der optischen parametrischen Verstärkung (OPA: „Optical Parametric Amplification“ [55]) zur Erzeugung eines komprimierbaren, spektral breitbandigen Impulses beschritten. Über eine spezielle, nicht kollineare Strahlführung erzielt man eine Gruppenlaufzeitanpassung von Pump-, Signal- und Idlerwelle im nichtlinearen Medium (NOPA: „Noncollinear Optical Parametric Amplification“). Mit Hilfe eines Prismas wird dann die zur breitbandigen Phasenanpassung im Typ I BBO Kristall nötige Winkeldispersion des Pumpimpulses eingeführt. Der zu verstärkende Signalimpuls wird vor dem eigentlichen OPA über Selbstphasenmodulation z.B. in einem Saphirplättchen spektral verbreitert. Ein großer Vorteil dieses Verfahrens liegt in der Erzeugung eines relativ gering modulierten Spektrums sowie der Option einer spektralen Durchstimbarkeit der verstärkten Impulse [56, 57]. Unter Ausnutzung moderner Methoden der Dispersionskompensation konnte so ein parametrisch verstärkter Impuls mit einer spektralen Breite von 250 THz auf eine zeitliche Impulsdauer von 4 fs komprimiert werden [58].

2.4 Charakterisierung ultrakurzer optischer Laserimpulse

Wie misst man nun die Feld- bzw. Intensitätsstruktur eines ultrakurzen optischen Impulses, wenn die Zeitauflösung selbst moderner Detektoren und Samplingszilloskope hierfür unzureichend ist? Eine Lösung liegt im optischen Abtasten des elektrischen Impulsfeldes mit Hilfe eines weiteren Abtastimpulses. Der Informationsgehalt einer solchen Messung hängt jedoch stark von der durch die Dauer des Abtastimpulses gegebenen zeitlichen Auflösung ab. So ist es z.B. mit der Methode des „Electro-optic Sampling“ möglich, die exakte Feldstruktur $E(t)$ (einschließlich der absoluten Phase) von Terahertzimpulsen mit Hilfe ultrakurzer optischer Femtosekunden-Abtastimpulse zu vermessen [15, 16]. Mit erheblich mehr Aufwand gelang kürzlich auch das direkte Abtasten der elektrischen Feldstruktur eines Femtosekunden-Laserimpulses durch Attosekundenimpulse des extremen ultravioleten (XUV) Spektralbereichs [17]. Stehen jedoch keine derart kurzen Abtastimpulse mit Dauern unterhalb eines halben Feldzyklus des zu charakterisierenden Impulses zur Verfügung, kann ein Impuls mit seinem eigenen Duplikat abgetastet werden. Das Ergebnis ist eine Autokorrelation des Impulses, der jegliche Information bezüglich des Feldverlaufs fehlt. Lediglich die Dauer des Impulses lässt sich auf diese Weise abschätzen.

Aus diesem Grund wurden speziell in den letzten 15 Jahren Messmethoden entwickelt, die eine Rekonstruktion sowohl des Intensitätsprofils $|\tilde{\mathcal{E}}(t)|^2$ als auch der zeitlichen Variation der Trägerfrequenz, des sog. Chirps eines Laserimpulses, zulassen. Abgesehen vom Wert der absoluten Phase, kann damit das elektrische Impulsfeld am Ort der Detektion auf indirektem Wege bestimmt werden. Auf die zwei wichtigsten Vertreter dieser sog. vollständigen Charakterisierungsverfahren, FROG („Frequency-Resolved Optical Gating“ [59]) und SPIDER („Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-Field Reconstruction“ [60]), wird im Folgenden näher eingegangen. Während die FROG-Methode auf einer Erweiterung des Autokorrelationsverfahrens beruht, liegt dem SPIDER-Verfahren die Messung eines spektralen Interferogramms zugrunde.

2.4.1 Die Autokorrelation

Beim Autokorrelationsverfahren wird der Intensitätsverlauf des Impulses auf der Zeitachse mit einem Duplikat seiner selbst abgetastet. Da lediglich der zeitliche Überlappungsbereich beider Impulse das erwünschte Detektionssi-

gnal erzeugen soll, ist ein nichtlinearer optischer Prozess, der dieses Signal aus Photonen beider Impulse bildet, notwendig. Aufgrund seiner hohen Empfindlichkeit wird hierzu in der Regel auf den SHG-Prozess in einem $\chi^{(2)}$ -Medium zurückgegriffen.

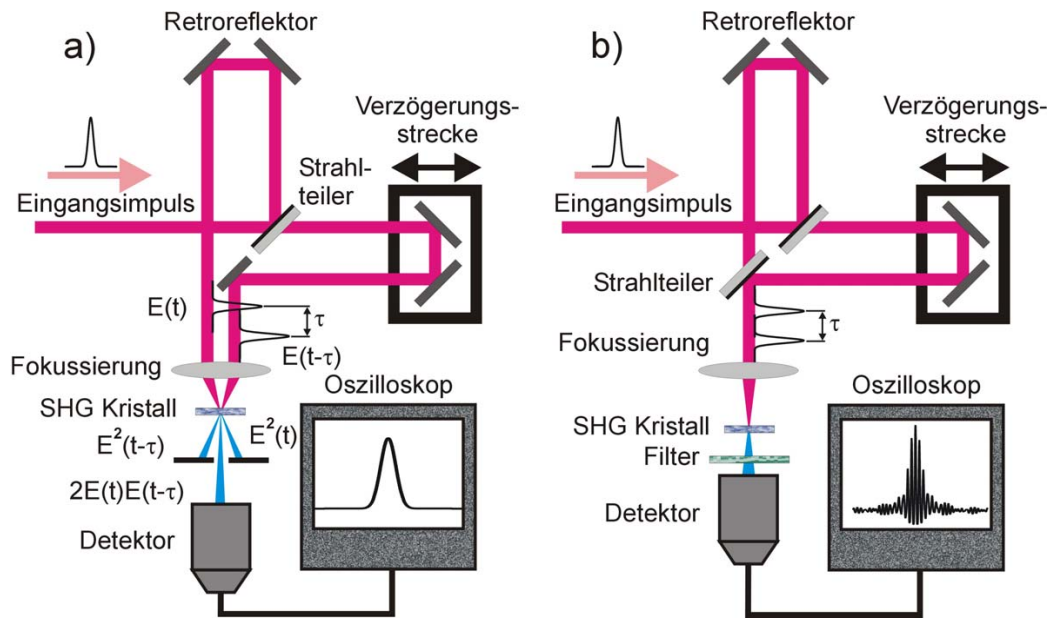


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau: a) Intensitätsautokorrektor: Durch einen nicht kollinearen Strahlengang werden interferometrische Effekte unterdrückt. b) Interferometrischer Autokorrektor: Der kollineare Strahlengang bedingt die Interferenz fundamentaler und frequenzverdoppelter Anteile beider Impulse (siehe Text).

Die SHG-Intensitätsautokorrelation

Die erste Methode, die zur Messung einer Impulsdauer zum Einsatz kam und über 20 Jahre maßgebend war, ist die Aufnahme einer Intensitätsautokorrelation des Impulses [61]. Der optische Aufbau eines SHG- Intensitätsautokorrektors ist in Abbildung 2.5 a) dargestellt. Der zu messende Impuls $E(t)$ wird zunächst in zwei identische Repliken zerlegt, die unterschiedlich lange Wegstrecken zurücklegen, bevor sie sich in einem SHG-Kristall räumlich überlappen. Der zeitliche Abstand τ zwischen den beiden Impulsen kann mittels einer ansteuerbaren Verzögerungsstrecke mit Sub-fs-Präzision eingestellt werden. Dabei verlagert man das Problem einer zeitlichen Messung im fs-Bereich auf die lösbare Aufgabe einer Wegmessung mit Sub-Mikrometer-Genauigkeit.

Über den Prozess der Summenfrequenzerzeugung im SHG-Kristall folgt die erwünschte Multiplikation der Signalfunktion $\tilde{E}(t)$ mit der Abtastfunktion $\tilde{E}(t - \tau)$. So entsteht im $\chi^{(2)}$ -Kristall ein Feld bei der Frequenz der zweiten Harmonischen

$$\begin{aligned}\tilde{E}_{2\omega}(t, \tau) &\propto (\tilde{E}(t) + \tilde{E}(t - \tau))^2 \\ &\propto \tilde{E}^2(t) + \underbrace{2\tilde{E}(t)\tilde{E}(t - \tau)}_{=\tilde{E}_{AC}(t, \tau)} + \tilde{E}^2(t - \tau).\end{aligned}\quad (2.38)$$

Aufgrund des nicht kollinearen Strahlengangs und der Phasenanpassbedingung im Kristall gelingt die räumliche Trennung des Autokorrelationsfeldes $\tilde{E}_{AC}(t, \tau)$ von den fundamentalen Signalen und deren frequenzverdoppelten Anteilen, wodurch die Autokorrelation untergrundfrei detektiert werden kann. Eine Messung der Intensität des Autokorrelationssignals $|\tilde{E}_{AC}(t, \tau)|^2$ mit einem langsamen Detektor, wie z.B. einer Photodiode, führt dann zu einem zeitlich integrierten Signal, das nur noch vom langsam durchzufahrenden Impulsabstand τ abhängt:

$$I_{AC}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} |\tilde{E}(t)\tilde{E}(t - \tau)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t - \tau) dt. \quad (2.39)$$

Eine solche Autokorrelation (AC) erlaubt keine Aussagen bezüglich zeitlicher Asymmetrie der Impulsform $I(t)$, da die AC selber stets symmetrisch ist: $I_{AC}(\tau) = I_{AC}(-\tau)$. Auch fehlt ihr jegliche Information über die Phase bzw. den Chirp des Impulses. Damit lässt die AC eine Aussage über die tatsächliche Dauer des Eingangsimpulses nur dann zu, wenn dessen Form bereits bekannt ist. Die Annahme einer bestimmten Impulsform kann in einigen Fällen durch die Art der Impulserzeugung begründet und über die Form der Autokorrelation verifiziert werden. So führt z.B. die Impulserzeugung über solitonenartige Formungsprozesse zu einer Sech^2 -Intensitätsstruktur. Die Impulsdauer τ_P kann dann aus dem Quotienten der Autokorrelationshalbwertbreite τ_{AC} und einem Entfaltungsfaktor, der wiederum von der Impulsform und der Art der Autokorrelation abhängt, berechnet werden (siehe Tabelle 2.1).

Die Interferometrische Autokorrelation

Mehr Information über den Impuls enthält die in den 80er Jahren von Jean-Claude Diels eingeführte interferometrische Autokorrelation (IAC) [62, 63,

Impulsform $E^2(t)$:	Entfaltungsfaktor τ_{AC}/τ_P	$\Delta\nu \tau_P$
Gauß: e^{-t^2}	1.414	0.441
sech ²	1.543	0.315

Tabelle 2.1: Entfaltungsfaktoren der Intensitätsautokorrelation und Zeit-Bandbreiten-Produkte des fourierlimitierten Impulses [24].

24]. Bei dieser wird ein kollinear propagierendes Impulspaar in den SHG-Kristall fokussiert [siehe Abbildung 2.5 b)]. Die Überlagerung fundamentaler und frequenzverdoppelter Impulspaare ergibt ein τ -abhängiges Interferenzmuster mit modulierten Anteilen bei der fundamentalen Frequenz ω_0 und der zweiten Harmonischen $2\omega_0$. Das durch einen langsamen Detektor zeitlich integrierte IAC-Signal hat nach Gleichung (2.38) die Form:

$$I_{IAC}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |(\tilde{E}(t) + \tilde{E}(t - \tau))^2|^2 dt. \quad (2.40)$$

Unter Benutzung von Gleichung (2.4) für das elektrische Feld läßt sich das Integral der Gleichung (2.40) in vier Terme aufschlüsseln [24, 64]:

$$I_{IAC}(\tau) \propto 2I_0 + 4I_{AC}(\tau) + 8\operatorname{Re} [F_1(\tau) e^{-i\omega_0\tau}] + 2\operatorname{Re} [F_2(\tau) e^{-i2\omega_0\tau}]. \quad (2.41)$$

Mit der Normierung $\int I(t)^2 = 1$ [64], die dem SHG-Untergrund I_0 den Wert 1 zuweist, vereinfacht sich Gleichung (2.41) zu

$$I_{IAC}(\tau) = 1 + 2I_{AC}(\tau) + 4\operatorname{Re} [F_1(\tau) e^{-i\omega_0\tau}] + \operatorname{Re} [F_2(\tau) e^{-i2\omega_0\tau}], \quad (2.42)$$

mit

$$\begin{aligned} I_0 &= \int \frac{1}{2} [I(t)^2 + I(t - \tau)^2] dt \stackrel{!}{=} 1, \\ F_1(\tau) &= \int \frac{1}{2} [I(t) + I(t - \tau)] \tilde{\mathcal{E}}(t) \tilde{\mathcal{E}}^*(t - \tau) dt, \\ F_2(\tau) &= \int \tilde{\mathcal{E}}(t)^2 \tilde{\mathcal{E}}^*(t - \tau)^2 dt. \end{aligned} \quad (2.43)$$

Eine interferometrische Autokorrelation setzt sich demnach aus folgenden Beiträgen zusammen: I_0 beschreibt den Hintergrundanteil der Strahlung, verursacht durch die unabhängig voneinander frequenzverdoppelten Impulse. Durch den Term I_{AC} ist auch die Intensitätsautokorrelation des Impulses [Gleichung (2.39)] in der IAC kodiert. Schließlich enthalten die Integrale F_1 und F_2 die Amplituden der mit der Trägerfrequenz ω_0 und der zweiten Harmonischen $2\omega_0$ entsprechend modulierten Anteile einer IAC, wobei das Integral F_2 die Interferenz zwischen den beiden frequenzverdoppelten Impulsen

beschreibt. Der Term $F_1(\tau)$ besteht aus einem Interferogramm des fundamentalen Feldes $E(t)$, das noch durch den zusätzlichen Faktor $I(t) + I(t - \tau)$ beeinflusst wird.

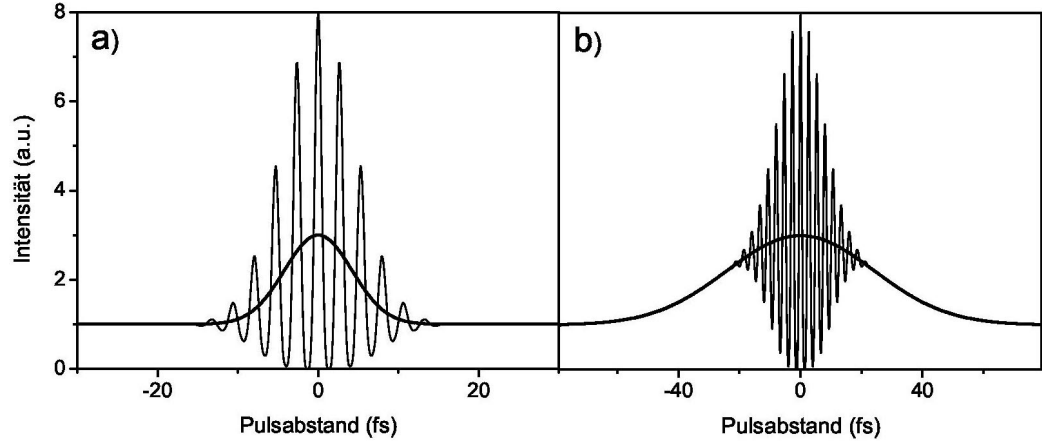


Abbildung 2.6: Interferometrische Autokorrelation [dünne Linie, Gleichung (2.42)] und Intensitätsautokorrelation [dicke Linie, $1 + 2I_{AC}(\tau)$ und Gleichung (2.39)] eines a) fourierlimitierten Gauß-Impulses mit Dauer von 7 fs, und b) derselbe Impuls, nachdem er dispersiv ($GDD = 100 \text{ fs}^2$) auf eine Dauer von 40 fs gestreckt wurde.

Eine Abschätzung der allgemeinen Struktur einer IAC erhält man über die folgenden Eigenschaften: Analog zur AC gilt auch für die IAC: $I_{IAC}(\tau) = I_{IAC}(-\tau)$, wodurch die Information einer eventuellen zeitlichen Asymmetrie des Impulses verloren geht. Des Weiteren folgt aus Gleichung (2.42) das typische 8:1 Verhältnis der IAC zwischen ihrem maximalen Wert bei $\tau = 0$ und dem konstanten Hintergrund bei $\tau \rightarrow \pm\infty$. Variiert man ausgehend von $\tau = 0$ den zeitlichen Pulsabstand in Schritten von $\Delta\tau = \pi/\omega_0$, erfolgt zunächst fast vollständige destruktive Interferenz [$I_{IAC}(\tau = \pm\pi/\omega_0) \approx 0$], da sich nun die gesamte Feldstruktur des einen Impulses in Gegenphase zur Feldstruktur des zweiten Impulses befindet. Im Fortgang wechseln sich konstruktive und destruktive Interferenz ab, bis der Impulsüberlapp verschwindet [siehe Abbildung 2.6 a)]. Ein anderes Verhalten ist hingegen bei stark gechirpten Impulsen zu beobachten. Eine zeitlich, über die Impulsdauer stark variierende Schwingungsdauer des elektrischen Feldes führt schon bei geringem zeitlichen Abstand der beiden Impulse zu einem raschen Dephasieren der beiden Feldstrukturen. Interferenzen können sich dadurch nicht mehr vollständig ausbilden und bleiben bei größerem Pulsabstand τ ganz aus [siehe $|\tau| > 20 \text{ fs}$ in Abbildung 2.6 b)]. Die IAC enthält also auch zusätzliche Information über die zeitliche Phase des Impulses, und es gibt Ansätze, diese aus einer IAC-Spur

zu rekonstruieren [63, 64]. Im Falle eines nahezu Fourier-limitierten Impulses ist eine interferometrische Autokorrelation selbstkalibrierend [Abbildung 2.6 a)]. Kennt man die Trägerfrequenz ω_0 des Impulses, lässt sich die Modulationsperiode der IAC einer zeitlichen Verzögerung von $\Delta\tau = \pm 2\pi/\omega_0$ zwischen den Impulsen zuordnen (2,67 fs pro Periode bei $\lambda_0=800$ nm). Ein Unterdrücken der Interferenz einer IAC hat zur Folge, dass sich die Funktion dem Verlauf einer untergrundbehafteten AC annähert und in diese übergeht, wobei sämtliche Phaseninformation verloren geht:

$$I_{dc}(\tau) = 1 + 2 I_{AC}(\tau) . \quad (2.44)$$

Der Index dc in Gleichung (2.44) soll in diesem Fall den unmodulierten Anteil der IAC kennzeichnen. Eine dicke durchgezogene Linie in Abbildung 2.6 markiert den Verlauf der zugehörigen Intensitätsautokorrelation. Zu erkennen ist das typische Kontrastverhältnis von 3:1 für die Werte der Gleichung (2.44) bei $\tau = 0$ und $\pm\infty$.

Die Kombination von Autokorrelation und Spektrum

Vor der Einführung der sog. vollständigen Impulscharakterisierungsmethoden war das Bestreben groß, das Impulsfeld mit den vorhandenen Mitteln näherungsweise zu bestimmen. In der Zeitdomäne liefert die SHG-Autokorrelation lediglich ein symmetrisiertes Bild des Intensitätsverlaufs des Impulses ohne jegliche Phaseninformation. Eine unendliche Zahl von Feldverläufen kann daher einer AC zugeordnet werden, aber auch die Form der Feldeinhüllenden ist mehrdeutig. Eine Vermessung des Impulses in der Frequenzdomäne liefert ebenso wie eine lineare Autokorrelation das Impulsspektrum. Allerdings fehlt auch hier die Phaseninformation, so dass nur die Berechnung der Fourier-limitierten Impulsform gelingt. Eine Kombination der Information aus Spektrum $I(\omega)$ und Autokorrelation $I_{AC}(\tau)$ bietet jedoch die Möglichkeit, einen Impuls zu rekonstruieren, der diesen beiden Messungen genügt.

Eine Methode, die in diesem Zusammenhang häufig zum Einsatz kommt, ist der Gerchberg-Saxton-Algorithmus, der ursprünglich aus der Röntgenspektroskopie und Bildbearbeitung stammt [66]. Er basiert auf der Tatsache, dass oftmals die Kenntnis der Intensität $I(t)$ und des Spektrums $I(\omega)$ zur Phasenrekonstruktion ausreicht. Als Repräsentant einer Klasse von Phasenrekonstruktionsalgorithmen wird im Anhang B näher auf dessen Prinzip eingegangen. Allerdings verursacht selbst in einfachen Fällen allein die Symmetrie der Autokorrelation Mehrdeutigkeiten bezüglich der Impulsform. Chung und Weiner konnten darüberhinaus zeigen, dass bestimmte asymmetrische-symmetrische Impulspaare identische Autokorrelationen und Spektren besit-

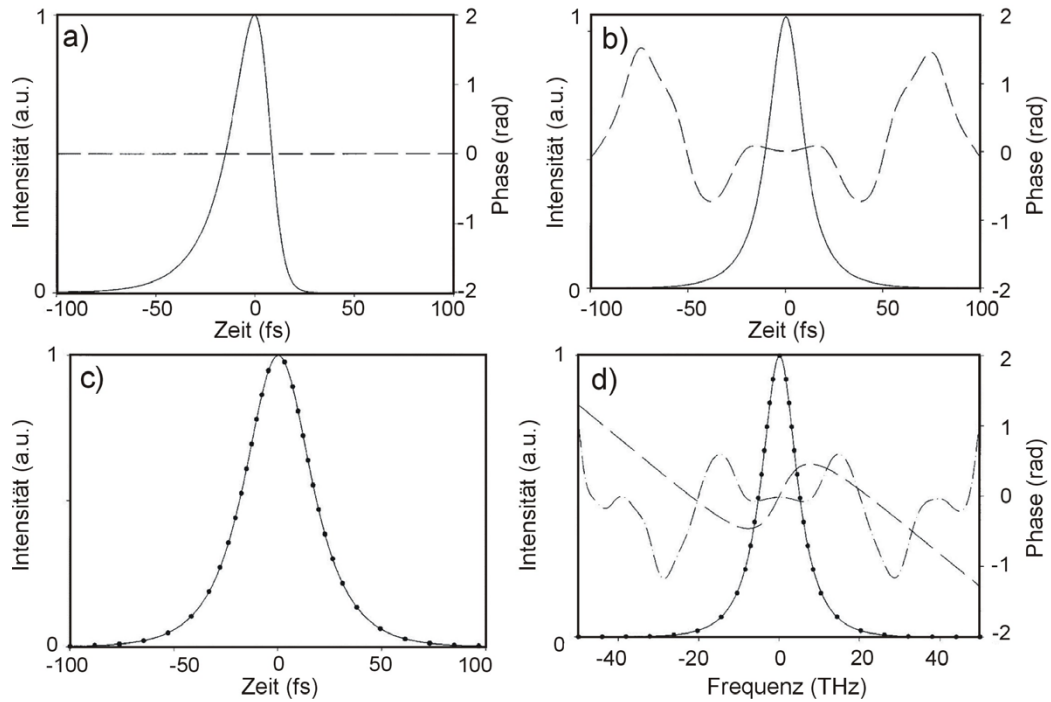


Abbildung 2.7: Zwei Impulse a) und b) mit unterschiedlichen Intensitäts- und Phasenverläufen liefern identische Autokorrelationen c) und Spektren d). c) Autokorrelation des asymmetrischen (durchgezogene Linie) und des symmetrischen (Punkte) Impulses. d) Leistungsspektrum des asymmetrischen (durchgezogene Linie) und des symmetrischen (Punkte) Impulses sowie deren jeweiligen spektralen Phasen (Striche und Strich-Punkt). (Kopie aus Referenz [65])

zen können [65]. Ein solches Beispiel aus Referenz [65] ist in Abbildung 2.7 dargestellt. Die zusätzliche Phasenempfindlichkeit der Interferometrischen Autokorrelation erlaubt es im Prinzip, der Kombination aus IAC und Spektrum eindeutig eine Impulsform und eine Phase zuzuordnen, wenn man von der stets vorhandenen Unbestimmtheit in der Zeitrichtung absieht [64]. Der praktische Nutzen dieser Erkenntnis ist jedoch gering, da in den allermeisten Fällen, wie dem in Abbildung 2.7, bereits ein geringes experimentelles Rauschen die verschiedenen IACs ununterscheidbar werden lässt [65].

Erfolgreicher bei der Impulsrekonstruktion, jedoch weniger verbreitet, sind Methoden, die auf der Kreuzkorrelation zwischen einem bekannten und einem unbekannten Impuls beruhen [67]. Auch die Variante eines nicht balancierten Michelson-Aufbaus durch ein zusätzliches lineares Element mit bekannter Dispersion in einem der beiden optischen Wege bricht die Symmetrie des Experiments. Die gemessene Kreuzkorrelation zwischen dem Originalimpuls

und seiner dispersiv modifizierten Kopie ermöglicht im Zusammenhang mit dem Impulsspektrum eine Rekonstruktion des Impulses [68].

Zusammenfassend kann man sagen, dass sämtliche vorgestellten Methoden der Phasenrekonstruktion mittels iterativer Dekorrelation anfällig gegenüber experimentellen Fehlern sind und sehr empfindlich auf experimentelles Rauschen reagieren, was zu vorzeitiger Stagnation des Algorithmus führt. In der Regel gibt es keinen strengen mathematischen Beweis und keine systematische Studie, die eine eindeutige Zuordnung eines einzigen Impulsfeldes zu einer Messung voraussagt. Aus diesen Gründen kommen die Verfahren, die im Folgenden vorgestellt werden, für eine vollständige Impulscharakterisierung bevorzugt zum Einsatz.

2.4.2 Das FROG-Verfahren

Anfang der 1990er Jahre wurde das erste zuverlässige Verfahren zur Bestimmung von Amplitude und Phase eines ultrakurzen optischen Impulses entwickelt. Es basiert auf der Aufnahme einer spektral aufgelösten Intensitätsautokorrelation und trägt den eingängigen Namen „Frequency-Resolved Optical Gating“ (FROG) [59, 69, 70, 71, 72]. Bei diesem Verfahren wird der optische Impuls mit einer Tor-Funktion (Gate) zeitlich abgetastet bzw. in eine Sequenz von zeitlichen Teilabschnitten zerlegt, deren Spektren einzeln vermessen werden. Damit wird der Impuls als optisches Spektrogramm im Zeit-Frequenz-Raum kodiert. Mittels iterativer Fitalgorithmen kann dann ein Impulsfeld gefunden werden, das diesem FROG-Spektrogramm entspricht.

Im Folgenden wird zunächst das zweidimensionale Phasenrekonstruktionsproblem des FROG-Prinzips erklärt. Auf die empfindlichste FROG-Variante, dem SHG-FROG, wird daraufhin näher eingegangen. Die sich anschließende Einführung in die Thematik der Impulsrekonstruktionsalgorithmen liefert die Grundlage für ein Verständnis der in dieser Arbeit entwickelten Modifikation des Algorithmus der generalisierten Projektionen. Abschließend werden die wichtigsten Fehlerquellen des FROG-Verfahrens aufgezeigt.

Das Grundprinzip

Die Bezeichnung FROG vereint eine Reihe verschiedener spektrographischer Methoden, die auf unterschiedlichen Strahlgeometrien bzw. verschiedenen Typen von Autokorrelatoren beruhen, bei denen lediglich der Detektor durch ein Spektrometer ersetzt wurde. So benutzen die folgenden FROG-Varianten eine Nichtlinearität dritter Ordnung: „Polarization-Gating FROG“

(PG-FROG, [70]), „Self-Diffraction FROG“ (SD-FROG, [71, 73]) und „Third-Harmonic Generation FROG“ (THG-FROG, [74]). Die am häufigsten eingesetzte Methode, das „Second-Harmonic Generation FROG“ (SHG-FROG), basiert auf dem Prinzip des SHG-Intensitätsautokorrektors der Abbildung 2.5 a). Auf diese Variante wird im nächsten Abschnitt genauer eingegangen, da sie auch im Rahmen dieser Arbeit angewendet wurde. Eine detaillierte Beschreibung der verschiedenen Verfahren findet man in Referenz [59].

Die resultierenden Spektrogramme sämtlicher dieser FROG-Geometrien lassen sich in folgender Form mathematisch beschreiben:

$$I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}_{\text{sig}}(t, \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (2.45)$$

wobei sich die FROG-Spuren $I_{\text{FROG}}(\omega, \tau)$ der verschiedenen klassischen FROG-Varianten lediglich in der Ausprägung des Signalfeldes

$$\tilde{E}_{\text{sig}}(t, \tau) = \tilde{\mathcal{E}}(t) G(t - \tau) \quad (2.46)$$

unterscheiden (siehe Tabelle 2.2). $G(t - \tau)$ ist hier die Abtastfunktion, deren zeitliche Verzögerung τ gegenüber dem abzutastenden Feld $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ einstellbar ist. Verwendet man als Abtastfunktion einen Impuls endlicher Länge, der im Idealfall kürzer ist als das auszumessende Signal, so misst man für jeden Zeitpunkt τ die spektralen Komponenten des Eingangsimpulses, die im abgetasteten Zeitfenster liegen. Bereits die Betrachtung eines Spektrogramms kann also wie im Beispiel der Abbildungen 2.8 b) und c) intuitiv sein, da leicht zu erkennen ist, wann welche Frequenzen im Impuls auftreten.

Gleichung (2.45) verdeutlicht aber auch, dass die Verwendung eines unendlich kurzen Abtastimpulses aufgrund dessen Breitbandigkeit nur die Bestimmung

FROG-Geometrie	Signalfeld $\tilde{E}_{\text{sig}}(t, \tau)$	Nichtlinearität	Frequenzbereich der Detektion
SHG FROG	$\tilde{\mathcal{E}}(t)\tilde{\mathcal{E}}(t - \tau)$	$\chi^{(2)}$	2ω
PG-FROG	$\tilde{\mathcal{E}}(t) \tilde{\mathcal{E}}(t - \tau) ^2$	$\chi^{(3)}$	ω
SD-FROG	$\tilde{\mathcal{E}}(t)^2\tilde{\mathcal{E}}^*(t - \tau)$	$\chi^{(3)}$	ω
THG FROG	$\tilde{\mathcal{E}}(t)^2\tilde{\mathcal{E}}(t - \tau)$	$\chi^{(3)}$	3ω

Tabelle 2.2: Überblick über gängige FROG-Varianten und deren mathematische Beschreibung des Signalfeldes $\tilde{E}_{\text{sig}}(t, \tau)$.

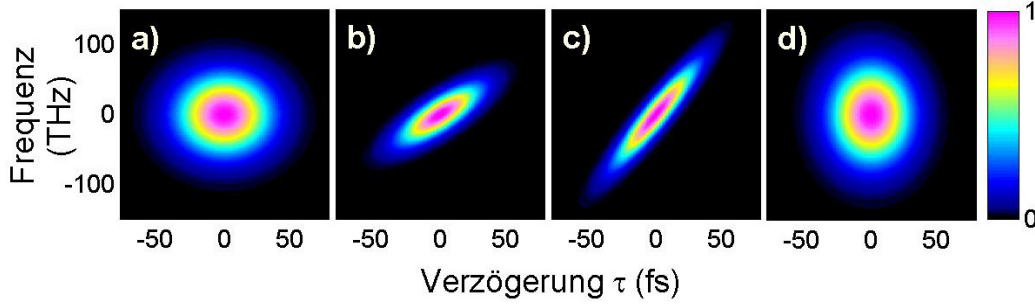


Abbildung 2.8: Simulierte FROG-Spuren für den einfachen Fall eines Gauß-Impulses mit einem Fourierlimit von 7 fs, der durch eine Dispersion $GDD = 100 \text{ fs}^2$ gestreckt wurde. a) SHG-FROG, b) PG-FROG, c) SD-FROG und d) THG-FROG. Die Trägerfrequenz wurde von der Frequenzachse abgezogen. Der positive Chirp ist aus den intuitiven Spuren b) und c) deutlich ablesbar.

des Intensitätsverlaufs $I(t) = |\tilde{\mathcal{E}}(t)|^2$ ermöglicht, während ein monochromatisches Abtasten lediglich das Spektrum $I(\omega)$ liefert. Natürlich fehlt auch den einzeln gemessenen Spektren eines ideal aufgenommenen Spektrogramms generell die Phaseninformation. Dies gilt allerdings nicht für den gesamten Satz an Spektren, der während des zeitlichen Durchfahrens des Abtastimpulses durch den Eingangsimpuls aufgenommen wurde. Leider existiert im Falle der Charakterisierung ultrakurzer optischer Impulse keine wohlbekannte Abtastfunktion $G(t - \tau)$ mit einer kürzeren zeitlichen Struktur als der des zu messenden Impulses. Aus diesem Grund ist man gezwungen, den Abtastimpuls aus dem Eingangsimpuls zu gewinnen: $G = G[\tilde{\mathcal{E}}(t - \tau)]$, was wiederum einen Autokorrelationsaufbau bedingt. Als Folge davon sind die klassischen Inversionsalgorithmen zur Bestimmung von $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ aus Spektrogrammen mit bekannter Abtastfunktion nicht auf eine FROG-Messung anwendbar.

Obwohl die erste Zeit-Frequenz-Messung an einem optischen Impuls bereits 1971 von E. Treacy durchgeführt wurde [75], gelang es erst 1993 der Gruppe um R. Trebino die im Spektrogramm enthaltene Impulsinformation zu entschlüsseln. Sie konnten die Aufgabe, das Feld $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ in Amplitude und Phase aus einem Spektrogramm zu gewinnen, auf ein bereits bekanntes und lösbares zweidimensionales Phasenrekonstruktionsproblem zurückführen [76]. So enthält eine FROG-Spur $I_{\text{FROG}}(\omega, \tau)$ die Amplitude einer Größe, die nach zweidimensionaler Fouriertransformation als $\tilde{E}_{\text{sig}}(t, \Omega)$ geschrieben werden kann:

$$I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}_{\text{sig}}(t, \Omega) e^{-i\omega t - i\Omega \tau} dt d\Omega \right|^2. \quad (2.47)$$

Im Rahmen des 2D-Phasenproblems gelingt unter bestimmten Voraussetzungen die Rekonstruktion von $\tilde{E}_{sig}(t, \Omega)$ in Amplitude und Phase allein aus der Kenntnis der reellen Größe $I_{\text{FROG}}(\omega, \tau)$. Die vollständige Kenntnis von $\tilde{E}_{sig}(t, \Omega)$ definiert dann auch das Impulsfeld $\tilde{\mathcal{E}}(t)$, da $\tilde{\mathcal{E}}(t) \propto \tilde{E}_{sig}(t, \Omega = 0)$ gilt [72].

Die zweidimensionale Phasenrekonstruktion ist ein Problem, das bis auf triviale Mehrdeutigkeiten, z.B. verursacht durch einen unbestimmten absoluten Phasenfaktor oder eine zeitlichen Verschiebung, in den meisten Fällen eine einzige und eindeutige Lösung besitzt („essentially unique solution“). Allerdings werden dafür gewisse Bedingungen an das Signalfeld $\tilde{E}_{sig}(t, \Omega)$ gestellt, das nur innerhalb eines endlichen Bereiches der Variablen t und Ω nicht verschwindende Werte annehmen darf. Da diese Bedingung im Falle eines optischen Impulses nicht erfüllt ist, verlässt man sich auf die Randbedingung der Gleichung (2.46), die die Menge der möglichen Signalfelder einschränkt. Es ist zu beachten, dass auch beim 2D-Phasenrekonstruktionsproblem mehr als eine Lösung auftreten kann, wenn auch mit geringer Wahrscheinlichkeit. Leider existieren nur wenige systematische Studien bezüglich der Höhe dieser Wahrscheinlichkeit beim FROG-Verfahren mit dessen abweichender Randbedingung.

SHG-FROG und FROG-Marginals

Das SHG-FROG beruht als einzige der FROG-Methoden auf einer Nichtlinearität zweiter Ordnung, wodurch es um Größenordnungen empfindlicher ist als die auf $\chi^{(3)}$ -Prozessen basierenden Verfahren [77, 78]. Allerdings erkauft man sich diesen Vorteil mit dem Verlust einer eindeutig bestimmten Zeitrichtung. Der Grund liegt in der Form eines in der Zeit symmetrischen Signalfeldes (siehe Tabelle 2.2). Dadurch bildet auch die SHG-FROG-Spur eine zeitlich symmetrisierte Variante eines Spektrogramms aus, das als solches nicht mehr intuitiv lesbar ist: $I_{\text{FROG}}^{\text{SHG}}(\omega, \tau) = I_{\text{FROG}}^{\text{SHG}}(\omega, -\tau)$. Ein bloßes Betrachten der FROG-Messung reicht in diesem Fall nicht mehr zur Feststellung der Art der Phasenstörung des Impulses aus [siehe z.B. Abb. 2.8 a)]. Basierend auf einer spektral aufgelösten SHG-Autokorrelation kann das SHG-FROG-Signal als

$$I_{\text{FROG}}^{\text{SHG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\mathcal{E}}(t) \tilde{\mathcal{E}}(t - \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (2.48)$$

geschrieben werden.

Ein Vorteil des FROG-Verfahrens ist die Möglichkeit, bestimmte systematische Fehler der Messung aufspüren zu können. Dazu dienen zwei eindimensionale Funktionen, die man als „FROG-Marginals“ bezeichnet und deren exakte Form von der jeweiligen FROG-Geometrie abhängt. Durch eine Integration der FROG-Spur entlang der Frequenzachse erhält man das „Delay-Marginal“

$$M_{\tau}^{\text{SHG}}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{FROG}}^{\text{SHG}}(\omega, \tau) d\omega \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t - \tau) dt, \quad (2.49)$$

das im Falle einer SHG-FROG-Messung proportional zur Intensitätsautokorrelation des Impulses ist. Von größerem praktischen Nutzen ist das „Frequenz-Marginal“, welches aus einer Integration entlang der Zeitachse τ folgt. Beim SHG-FROG nimmt dieses Marginal eine Form an, die mit der Selbstfaltung des Impulsspektrums $I(\omega)$ identisch ist:

$$M_{\omega}^{\text{SHG}}(\omega - 2\omega_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{FROG}}^{\text{SHG}}(\omega - 2\omega_0, \tau) d\tau \propto I(\omega - \omega_0) * I(\omega - \omega_0). \quad (2.50)$$

Weicht das SHG-FROG Frequenz-Marginal in seiner Form von der Selbstfaltung des Impulsspektrums ab, kann man davon ausgehen, dass ein systematischer Fehler in der Messung vorliegt. Speziell bei sehr kurzen und dadurch spektral breitbandigen Impulsen ist die Wahrscheinlichkeit einer spektral nicht konstanten Antwort einer oder mehrerer Komponenten im Messaufbau hoch.

Das SHG-FROG besitzt jedoch den großen Vorteil, dass dessen Frequenz-Marginal nicht nur zum Aufspüren von systematischen Fehlern längs der spektralen Achse Verwendung findet, sondern im gleichen Zug zur Fehlerkorrektur herangezogen werden kann [79]. Man kann eine Übereinstimmung von Frequenz-Marginal und selbstgefaltetem Spektrum erzwingen, wenn man die gemessene SHG-FROG-Spur mit dem Verhältnis beider multipliziert:

$$I_{\text{FROG kor}}^{\text{SHG}}(\omega - 2\omega_0, \tau) = \frac{I(\omega - \omega_0) * I(\omega - \omega_0)}{M_{\omega}^{\text{SHG}}(\omega - 2\omega_0)} \cdot I_{\text{FROG mess}}^{\text{SHG}}(\omega - 2\omega_0, \tau). \quad (2.51)$$

Es ist jedoch zu beachten, dass eine solche Korrektur den Fehler nur beseitigt, wenn dieser unabhängig von der Verzögerung τ und längs dieser Zeitachse konstant auftritt.

Algorithmen zur Impulsrekonstruktion

Während die auf $\chi^{(3)}$ -Nichtlinearitäten basierenden FROG-Methoden eine qualitative Abschätzung des Phasenverhaltens eines Impulses ermöglichen, gelingt dies bei einer SHG-FROG-Spur aufgrund ihrer zeitlichen Symmetrie nicht. Besonders in diesem Fall ist eine exakte quantitative Analyse des Spektrogramms, genauer die Bestimmung des Amplituden- und Phasenverlaufs des Impulses, nötig. Eine direkte, geschlossene Lösung des Problems existiert leider nicht, so dass man auf eine langsamere iterative Lösung des zweidimensionalen Phasenrekonstruktionsproblems angewiesen ist.

Verschiedenste iterative Algorithmen sind für diesen Zweck vorgeschlagen worden, von denen hier nur der relativ einfache und dem Gerchberg-Saxton-Algorithmus ähnelnde „Basic“-FROG Algorithmus und der auf generalisierten Projektionen (GP) beruhende GP-Algorithmus vorgestellt werden. Allgemeines Ziel dieser Algorithmen ist die Minimierung des sog. FROG-Fehlers

$$G^{(k)} = \sqrt{\frac{1}{N^2} \sum_{i,j=1}^N \left| I_{\text{FROG}}^{\text{mess}}(\omega_i, \tau_j) - \alpha I_{\text{FROG}}^{(k)}(\omega_i, \tau_j) \right|^2}, \quad (2.52)$$

wobei $I_{\text{FROG}}^{\text{mess}}(\omega_i, \tau_j)$ für die gemessene und auf ein Datengitter der Dimension $N \times N$ übertragene FROG-Spur steht und $I_{\text{FROG}}^{(k)}(\omega_i, \tau_j)$ die in k -ter Iteration rekonstruierte FROG-Spur ist. Der Skalierungsfaktor α normiert die berechnete FROG-Spur so, dass der Fehler $G^{(k)}$ in jeder Iteration minimal wird. Es ist zu beachten, dass die Fehlergröße G ebenso vom Gittermaß N wie auch vom Prozentsatz, mit dem das Gitter durch tatsächliche Messpunkte ausgefüllt ist, abhängt. Tendenziell liefert ein dichteres Gitter (größeres N) niedrigere FROG-Fehler.

Der „Basic“-FROG Algorithmus:

Dieser Algorithmus ist einer der ersten, der zur Impulsrekonstruktion aus einer FROG-Spur zur Anwendung kam [69]. Er konvergiert rasch, stagniert jedoch bereits bei relativ hohen Fehlerwerten. Ein Schema des Basic-Algorithmus, angewandt auf das SHG-FROG, ist in Abbildung 2.9 als Flussdiagramm zu sehen. Das Grundprinzip besteht im Auffinden eines Signalfeldes, das gleichzeitig zwei Identitäten erfüllen muss. Eine Bedingung ist die Existenz eines elektrischen Feldes $\tilde{\mathcal{E}}(t)$, das gemäß Tabelle 2.2 das Signalfeld definiert. Andererseits muss sich aus dem Signalfeld auch die gemessene FROG-Spur ergeben. Aus diesem Grund wird analog zum Gerchberg-Saxton-Algorithmus (Abbildung B.1 in Anhang B) mittels Fouriertransformation zwischen dem Zeit- und Frequenzraum hin- und hergewechselt, wobei in jeder

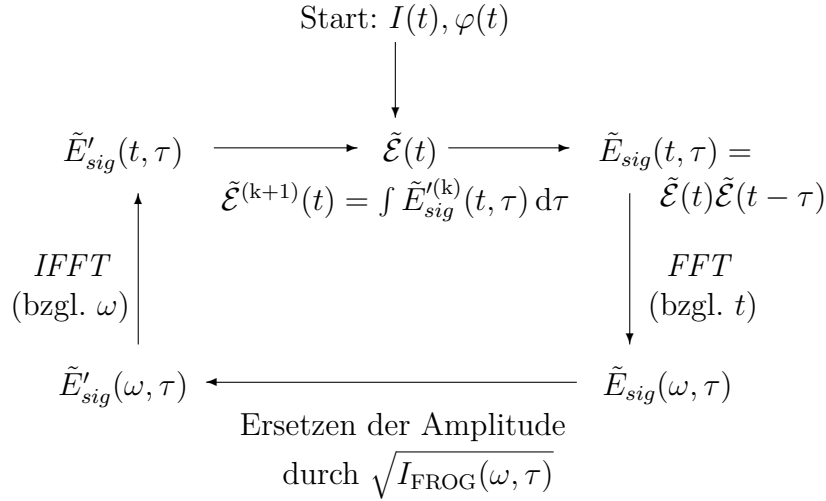


Abbildung 2.9: Iterative Impulsrekonstruktion: Der „Basic“-FROG-Algorithmus

Domäne die jeweilige Randbedingung für das Signalfeld eingesetzt wird. Der Algorithmus beginnt mit einem im Allgemeinen beliebigen Startwert für das elektrische Feld $\tilde{\mathcal{E}}(t)$, aus dem dann das Signalfeld $\tilde{E}_{sig}(t, \tau) = \tilde{\mathcal{E}}(t)\tilde{\mathcal{E}}(t - \tau)$ berechnet wird. Nach einer Fouriertransformation des Signalfeldes bezüglich t wird die Amplitude der resultierenden zweidimensionalen komplexen Funktion $\tilde{E}_{sig}(\omega, \tau)$ durch die Wurzel der gemessenen FROG-Intensitätswerte ersetzt, ohne dass dabei die Phase beeinflusst wird:

$$\tilde{E}'_{sig}(\omega, \tau) = \frac{\tilde{E}_{sig}(\omega, \tau)}{|\tilde{E}_{sig}(\omega, \tau)|} \sqrt{I_{FROG}^{mess}(\omega, \tau)}. \quad (2.53)$$

Durch inverse Fouriertransformation gewinnt man aus dem neuen Signalfeld $\tilde{E}'_{sig}(\omega, \tau)$ das Äquivalent $\tilde{E}'_{sig}(t, \tau)$ im Zeitraum. Die Integration dieses Signalfeldes entlang der Verzögerungsachse τ ergibt ein neues elektrisches Startfeld $\tilde{\mathcal{E}}^{(k+1)}(t)$ für die nächste Iteration. Das modifizierte Signalfeld $\tilde{E}'_{sig}(t, \tau)$ genügt in der Regel nicht der nichtlinearen optischen Randbedingung (siehe Tabelle 2.2), so dass eine, der Randbedingung konforme Neuberechnung von $\tilde{E}_{sig}(t, \tau)$ dem Algorithmus eine physikalische FROG-Spur aufzwingt. Besonders bei komplizierten Impulsen tendiert dieser Algorithmus häufig zu vorzeitiger Stagnation.

Der Algorithmus generalisierter Projektionen:

Eine Lösung dieses Problems liefert ein universell anwendbarer Algorithmus,

der auf der Methode der generalisierten Projektionen („Generalized Projections Algorithm“: GPA [80, 81]) beruht. Hierbei handelt es sich um Projektionen im Hilbertraum auf bestimmte abgeschlossene Funktionen-Unterräume, die in der Praxis durch diskretisierte Variablen ausgedrückt werden. Das Grundprinzip ist in Abbildung 2.10 graphisch dargestellt. Der gesamte Raum der Abbildung stellt die Menge aller potentiellen Signalfelder $\tilde{E}_{sig}(t, \tau)$ dar. Diejenige Teilmenge, die der nichtlinearen optischen Randbedingung $[\tilde{E}_{sig}(t, \tau) = \tilde{\mathcal{E}}(t)\tilde{\mathcal{E}}(t - \tau)$ im Falle des SHG-FROG] genügt, wird durch den oberen elliptischen Bereich symbolisiert, während der untere Bereich diejenigen Signalfelder umfasst, die konform mit der gemessenen FROG-Spur sind. Am Berührungspunkt beider elliptischer Bereiche definiert das zugehörige Signalfeld das einzige, für eine Lösung in Frage kommende Impulsfeld $\tilde{\mathcal{E}}(t)$. Im Falle konvexer Teilmengen führen abwechselnde Projektionen auf den jeweils nächsten Punkt der anderen Teilmenge zum Auffinden der einzigen Lösung. Allerdings bilden die gegebenen Randbedingungen bei der FROG-Rekonstruktion keine konvexen Teilmengen aus, so dass es Fälle gibt, in denen eine Projektion nicht mehr eindeutig ist.

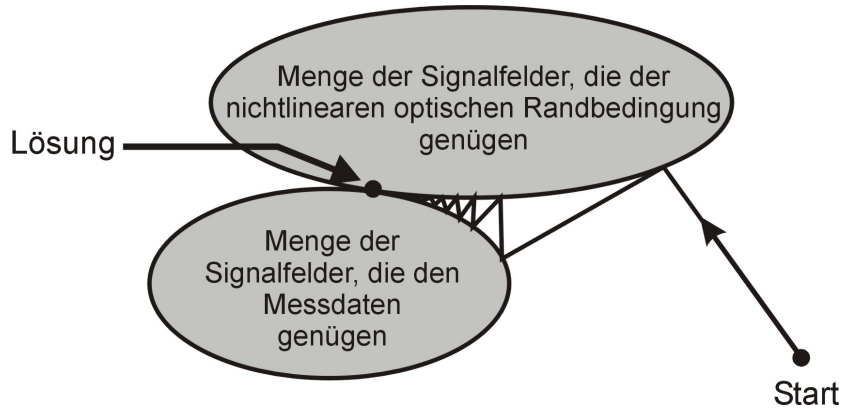


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung des „Generalized Projections Algorithm“

Ein auf generalisierten Projektionen basierender Rekonstruktionsalgorithmus stellt sich als Suchstrategie nach dem globalen Minimum des Abstands beider Teilmengen dar, ähnlich einer vieldimensionalen Fitprozedur nach dem Gradientenverfahren. Selbstverständlich liegt auch hier die Gefahr in der Konvergenz gegen ein lokales Minimum, das nicht die richtige Lösung des Problems darstellen würde. Das Flussdiagramm des GP-Algorithmus gleicht in weiten Teilen dem Schema der Abbildung 2.9. Allein die Konstruktion des Signalfeldes $\tilde{E}_{sig}(t, \tau)$ aus dem elektrischen Startfeld stellt eine Projek-

$$\begin{array}{c}
Z = \sum_{i,j=1}^N \left| \tilde{E}'_{sig}{}^{(k)}(t_i, \tau_j) - \tilde{E}_{sig}^{(k+1)}(t_i, \tau_j) \right|^2 \\
\downarrow \text{SHG-FROG} \\
Z_{SHG} = \sum_{i,j=1}^N \left| \tilde{E}'_{sig}{}^{(k)}(t_i, \tau_j) - \tilde{\mathcal{E}}(t_i) \tilde{\mathcal{E}}(t_i - \tau_j) \right|^2 \\
\downarrow \text{Gradientenbildung} \\
\partial Z_{SHG} / \partial \text{Re}[\tilde{\mathcal{E}}(t_i)], \partial Z_{SHG} / \partial \text{Im}[\tilde{\mathcal{E}}(t_i)] \\
\downarrow \begin{array}{c} \text{eindimensionale} \\ \text{Minimierung} \end{array} \\
\tilde{\mathcal{E}}^{(k+1)}(t_i) = \tilde{\mathcal{E}}^{(k)}(t_i) + \mu \left(\frac{\partial Z_{SHG}}{\partial \text{Re}[\tilde{\mathcal{E}}(t_i)]} \right) + i\mu \left(\frac{\partial Z_{SHG}}{\partial \text{Im}[\tilde{\mathcal{E}}(t_i)]} \right)
\end{array}$$

Abbildung 2.11: Anwendung eindimensionaler linearer Minimierung für die generalisierte Projektion auf die Menge der Signalfelder, die der nichtlinearen optischen Randbedingung genügen.

tion auf die obere Teilmenge der Abbildung 2.10 dar. Des Weiteren ist das Ersetzen der Amplitude des fouriertransformierten Feldes $\tilde{E}_{sig}(\omega, \tau)$ durch die Quadratwurzel der gemessenen FROG-Intensität $I_{\text{FROG}}(\omega, \tau)$ bereits eine generalisierte Projektion auf die untere Teilmenge der Abbildung 2.10 [siehe Gleichung (2.53)]. Erst bei der Aufstellung eines neuen elektrischen Feldes $\tilde{\mathcal{E}}^{(k+1)}(t)$ weicht der GP-Algorithmus von der Basic-Variante ab. Hierfür wird die Integration des Signalfeldes $\tilde{E}'_{sig}(t, \tau)$ durch die im Schema der Abbildung 2.11 skizzierte Prozedur ersetzt.

Das Ziel einer Projektion auf die obere Teilmenge der Abbildung 2.10 ist die Berechnung eines neuen Signalfeldes $\tilde{E}_{sig}^{(k+1)}(t, \tau)$, das einerseits der nichtlinearen optischen Randbedingung gehorcht und andererseits dem, im vorherigen Schritt ermittelten Signalfeld $\tilde{E}'_{sig}{}^{(k)}(t, \tau)$ am nächsten liegt. Letzteres wird über die Minimierung des funktionalen Abstands Z erreicht. Hierzu muss zunächst der Gradient von Z am Ort $\tilde{\mathcal{E}}^{(k+1)}(t_i) = \tilde{\mathcal{E}}^{(k)}(t_i)$ und anschließend die „Weglänge“ μ , die längs des Gradienten zurückzulegen ist, berechnet werden [82]. Der direkte Einbau der nichtlinearen optischen Randbedingung in den Projektionsschritt der Abbildung 2.11 sorgt für Stabilität und Flexibilität des GP-Algorithmus. Im Vergleich zum rasch konvergierenden Basic-Algorithmus benötigt der GPA pro Iteration mehr Zeit für die Berechnung des Gradienten und zur Minimierung. Allerdings nimmt die durch Z beschriebene multidi-

mensionale Oberfläche in der Umgebung des globalen Minimums eine parabolische Form an, so dass der GPA in kleinen Schritten zuverlässig bis zum experimentellen Fehler konvergieren kann.

Die Eigenschaft der Flexibilität des GPA bezieht sich auf die Möglichkeit, verschiedene nichtlineare, u.a. auch nicht instantane Prozesse bei der Aufstellung der Metrik Z zu berücksichtigen. Beim weiter unten behandelten interferometrischen FROG tritt jedoch der Fall ein, in dem die Universalität des GP-Algorithmus in dieser Form an ihre Grenzen gerät und die Basic-Variante überhaupt nicht mehr einsetzbar ist.

Die transversale geometrische Verschmierung als Fehlerquelle

Aufgrund der Kodierung eines optischen Impulses auf einem $N \times N$ -Gitter mit N^2 Datenpunkten spricht man von einer intrinsischen Redundanz einer FROG-Messung, da lediglich $2N$ Datenpunkte für eine Darstellung von Amplitude und Phase des elektrischen Impulsfeldes nötig sind. Das heißt, dass nicht jeder zufälligen Intensitätsverteilung auf dem Gitter ein bestimmter Impuls zugeordnet werden kann. Eine schlechte Konvergenz des Rekonstruktionsalgorithmus ist damit ein Hinweis auf eine fehlerbehaftete FROG-Messung. Mangelhafte Konvergenz kann jedoch auch bei komplexen zeitlichen Impulsformen auftreten.

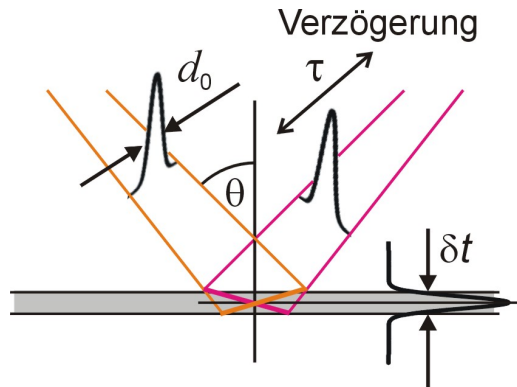


Abbildung 2.12: Der Effekt der transversalen geometrischen Verschmierung reduziert die zeitliche Auflösung eines optischen Impulses auf δt . Zu erkennen ist, dass sich dieselben Phasenfronten der beiden Impulse zu verschiedenen Verzögerungen τ kreuzen und sich dieser Schnittpunkt dabei transversal verschiebt.

Eine Fehlerquelle, die erst bei der SHG-FROG Messung von Impulsen mit nur wenigen Zyklen des optischen Feldes relevant wird, ist die „geometrische

Verschmierung“ der zeitlichen Impulsstruktur. Die nicht kollineare Strahlgeometrie eines herkömmlichen SHG-FROG-Aufbaus bewirkt eine transversale Abhängigkeit des Impulsabstandes τ (siehe Abbildung 2.12) [59, 83]. Dieser Effekt, den man erfolgreich bei der Aufnahme einer Einzelschuss-Autokorrelation bzw. im Einzelschuss-FROG ausnutzt, erweist sich in der vorgestellten klassischen Variante des SHG-FROG als Fehlerquelle, welche die zeitliche Auflösung der Messung begrenzt. Der Grund liegt in der räumlichen und damit auch transversalen Integration des konvertierten Signals durch den Detektor. Eine transversale τ -Abhängigkeit führt bei einer solchen Integration zu einer verminderten zeitlichen Auflösung des Signals, die im Falle eines Gauß-förmigen Strahl- und Impulsprofils zu

$$\delta t = \frac{d_0}{c} \tan \theta \xrightarrow{\theta \rightarrow 0} \delta t \approx \frac{d_0}{c} \theta \quad (2.54)$$

abgeschätzt werden kann [79, 84]. Hierbei bezeichnet θ den halben Kreuzungswinkel zwischen beiden Strahlen, d_0 ist der Strahldurchmesser im Fokus und c steht für die Lichtgeschwindigkeit. Die aus der FROG-Rekonstruktion ermittelte Impulsdauer τ_{mess} ist mit der tatsächlichen Dauer τ_p des Impulses über die Relation

$$\tau_{\text{mess}}^2 = \tau_p^2 + \delta t^2 \quad (2.55)$$

verknüpft.

Während das theoretische Limit der zeitlichen Auflösung bei $\delta t = \lambda/2\pi c \approx 0,4 \text{ fs}$ ($\lambda = 800 \text{ nm}$) liegt [84], kann die höchste experimentell erzielbare Auflösung zu $\delta t \approx 1 \text{ fs}$ abgeschätzt werden, wenn das Auftreten von Interferenzeffekten hinreichend unterdrücken werden soll. Abweichungen des Strahlprofils von einer idealen Gauß-Form sorgen für eine schlechteren Fokussierbarkeit der Impulse, was die zeitliche Auflösung zusätzlich reduziert. Daher stellt dieser geometrische Effekt im nahen Infrarotbereich eine nicht zu vernachlässigende Fehlerquelle insbesondere bei Impulsdauern unter 5 fs dar. In diesem Bereich führt eine FROG-Messung leicht zu einer Überschätzung der Impulsdauer um 5% bis 10% [85].

2.4.3 Das SPIDER-Verfahren

„Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction“ (SPIDER, [86, 60]) wurde erstmals 1998 von Iaconis und Walmsley zur direkten Messung der spektralen Phase eines ultrakurzen optischen Impulses vorgestellt. In Kombination mit einer Messung des Impulsspektrums ermöglicht dieses Verfahren die Rekonstruktion eines optischen Impulses. SPIDER

basiert auf der Methode der spektralen Interferometrie (SI), welche häufig zur Messung der Phasendifferenz zwischen zwei optischen Wegen eingesetzt wird [87, 88]. Der wichtigste Unterschied zur SI besteht jedoch in der Eigenschaft der Selbstreferenzierung: Für eine vollständige Impulsrekonstruktion muss die spektrale Phase des Referenzimpulses nicht bekannt sein. Die Aufnahme von lediglich zwei eindimensionalen Datensätzen in Kombination mit einer einfachen algebraischen Auswertung macht die Stärke des SPIDER-Verfahrens aus. Hohe Messraten und Impulscharakterisierung in Echtzeit werden mit vertretbarem Aufwand möglich [89, 90, 91]. Modifikationen des SPIDER-Prinzips erlauben zusätzlich die Impulscharakterisierung über einen weiten Bereich von Impulsparametern [92, 93, 94, 95, 96, 97, 98, 99, 100, 101, 102, 103].

In den folgenden Abschnitten werden die Grundlagen des SPIDER-Verfahrens beginnend mit dem Konzept der spektralen Interferometrie und der Phasenrekonstruktion erörtert.

Spektrale Interferometrie

Die spektrale Interferometrie (SI) wurde in den 1970er Jahren von Froehly et al. eingeführt und bietet die Möglichkeit einer zuverlässigen Dispersionsmessung [87, 88, 104]. In Abbildung 2.13 ist das Prinzip der spektralen Interferometrie am Beispiel eines Mach-Zehnder-Aufbaus skizziert.

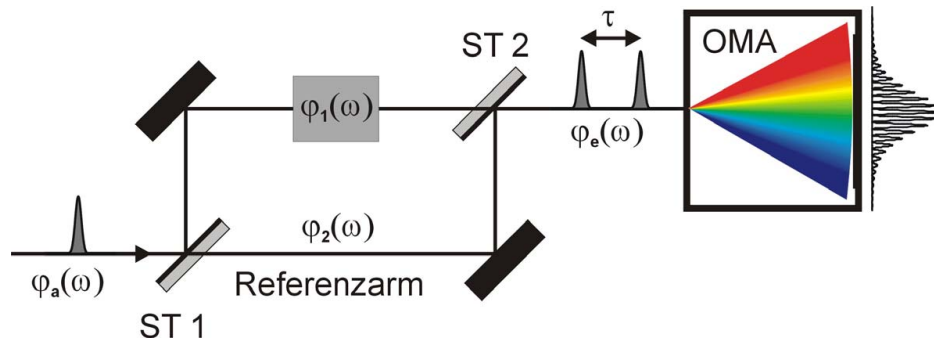


Abbildung 2.13: Schema eines Mach-Zehnder-Interferometers zur spektralen Interferometrie. Mit einem solchen Aufbau kann der Phasenunterschied $\varphi_1(\omega) - \varphi_2(\omega)$ zwischen beiden optischen Wegstrecken gemessen werden (ST: Strahlteiler, OMA: Spektrometer).

Ein spektral breitbandiger Impuls wird in zwei identische Repliken geteilt, die zwei unterschiedliche optische Wegstrecken zurücklegen, bevor sie in ei-

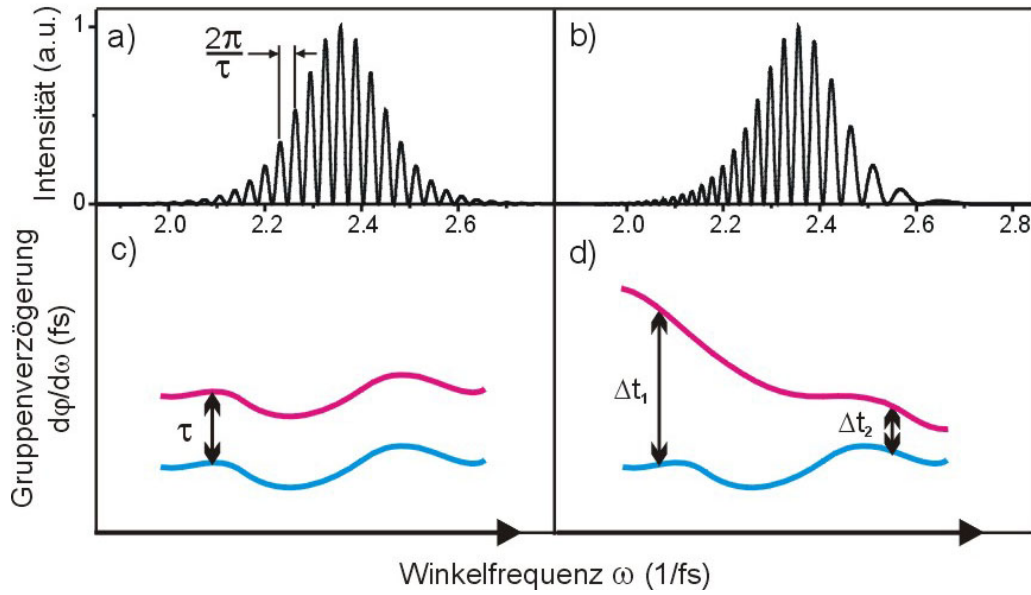


Abbildung 2.14: Simulation zweier spektraler Interferogramme in a) und b) sowie schematische Darstellung möglicher zugehöriger Gruppenfronten der beiden Impulse in c) und d). Der zugrundeliegende Eingangs- bzw. Referenzimpuls hat einen Sech^2 -Intensitätsverlauf mit einer Impulsdauer von 10 fs und eine Zentralwellenlänge von 800 nm. a) Spektrales Interferogramm nach Durchlaufen eines symmetrischen Aufbaus mit einem etwas längeren Referenzarm. Der Referenzimpuls eilt dem Testimpuls um $\tau = 200$ fs nach. b) Spektrales Interferogramm nach Zugabe zusätzlicher Materialdispersion von $\text{GDD} = 500 \text{ fs}^2$ in den Interferometerarm des Testimpulses (Näheres siehe Text).

nem Spektrometer miteinander interferieren. Entlang des einen Weges ändert sich die spektrale Phase des Impulses um φ_1 , während sie sich auf dem Referenzweg um φ_2 verschiebt. Bei einem symmetrischen, dispersionsbalancierten Interferometer sind die Beiträge der Spiegel, Strahlteiler und Luftwege zu beiden Phasen etwa gleich groß und in diesen enthalten. Beträgt der Phasenanteil von der Lichtquelle bis zum ersten Strahlteiler ST1 φ_a und vom zweiten Strahlteiler ST2 bis zum Spektrometer φ_e , so gehen diese Phasenanteile in beide spektralen Impulsphasen ein. Die elektrischen Felder der beiden Impulse lassen sich dann über

$$E_1(\omega) = |E_1(\omega)| e^{i(\varphi_a + \varphi_1 + \varphi_e)} \quad (2.56)$$

$$E_2(\omega) = |E_2(\omega)| e^{i(\varphi_a + \varphi_2 + \varphi_e)} \quad (2.57)$$

beschreiben. Ein Spektrometer misst die Intensität kohärent überlagelter

elektrischer Felder:

$$\begin{aligned} I_{\text{SI}}(\omega) &= |E_1(\omega) + E_2(\omega)|^2 \\ &= |E_1(\omega)|^2 + |E_2(\omega)|^2 + 2 |E_1(\omega)| |E_2(\omega)| \cos(\varphi_1(\omega) - \varphi_2(\omega)) . \end{aligned} \quad (2.58)$$

Lediglich der relative Phasenunterschied $\varphi_{\text{SI}}(\omega) = \varphi_1(\omega) - \varphi_2(\omega)$ zwischen beiden Interferometerarmen taucht im Interferenzterm auf und kann gemessen werden. Ein linearer Anteil $\omega\tau$ dieses Phasenunterschieds ist auf den zeitlichen Impulsabstand τ hinter dem Interferometer zurückzuführen. Die spektrale Phase des Interferogramms hat dann die Form:

$$\varphi_{\text{SI}}(\omega) = \omega\tau + \Delta\varphi(\omega) . \quad (2.59)$$

Der Interferometerarm mit bekanntem Phasengang wird als Referenzarm bezeichnet. Ist man lediglich an einer Dispersionsmessung zweiter und höherer Ordnungen interessiert, reicht es aus, die Dispersion im Referenzarm vernachlässigbar klein zu halten. Liegt jedoch das Interesse in der Kenntnis der Phase $\varphi_a + \varphi_1 + \varphi_e$ des einen Impulses, muss die Referenzphase $\varphi_a + \varphi_2 + \varphi_e$ genau bekannt sein (siehe z.B. TADPOLE-Technik: „Temporal Analysis by Dispersing a Pair Of Light E-fields“ [105]).

Abbildung 2.14 verdeutlicht das Prinzip der spektralen Interferometrie. Sendet man einen 10 fs dauernden Sech²-Impuls in ein absolut symmetrisches Interferometer wie das der Abbildung 2.13, bei dem sich beide Interferometerarme lediglich der Länge nach um $60 \mu\text{m}$ unterscheiden, so erhält man das spektrale Interferogramm der Abbildung 2.14 a). Der resultierende konstante zeitliche Abstand von $\tau = 200 \text{ fs}$ zwischen den Gruppenfronten beider Impulse führt zu einem äquidistant modulierten Interferogramm mit der Periode $2\pi/\tau$. Zusätzliche Materialdispersion im Arm des Testimpulses führt zu einer Abnahme des zeitlichen Abstandes gleicher Spektralkomponenten beider Impulse mit abnehmender Wellenlänge ($\Delta t_1 > \Delta t_2$). Dies spiegelt sich in einer entsprechenden Zunahme der Modulationsperiode ($2\pi/\Delta t_1 < 2\pi/\Delta t_2$) des Interferogramms [Abb. 2.14 b)] wider. Ein solches Interferogramm kodiert also nur die zeitlichen Abstände gleicher Frequenzkomponenten beider Impulse. Die genaue Struktur der Gruppenfront eines einzelnen Impulses bleibt jedoch verborgen.

Phasenrekonstruktion

Die Auflösung der Gleichung (2.58) nach der Phasendifferenz $\varphi_{\text{SI}}(\omega)$ bildet eine Möglichkeit der direkten Auswertung eines spektralen Interferogramms.

Allerdings ist dieser Weg relativ unzuverlässig, da sich Fehler im Amplitudenverlauf des Interferogramms direkt auf die Phase auswirken. Eine sehr robuste Methode der Phasenfilterung, basierend auf der Fourieranalyse des Interferogramms, wurde von Takeda et al. eingeführt [106] und soll an dieser Stelle vorgestellt werden.

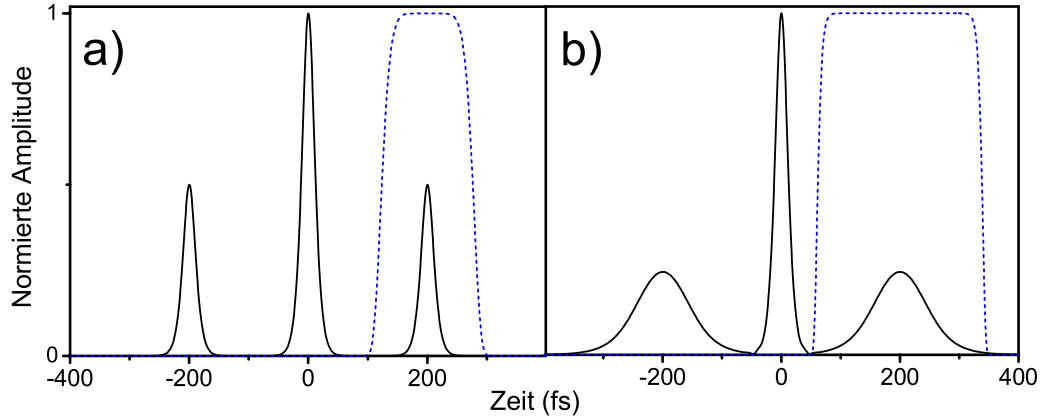


Abbildung 2.15: Fouriertransformierte spektrale Interferogramme. a) und b) beziehen sich entsprechend auf die Interferogramme der Abbildungen 2.14 a) und b). Zur Phasenrekonstruktion wird eines der Seitenbänder an der Position des Impulsabstandes τ über die Multiplikation mit einer geeigneten Filterfunktion (Super-Gauß, gestrichelt) isoliert. Das Argument der Rücktransformierten dieser gefilterten Funktion entspricht der spektralen Phase des Interferogramms.

Unter Benutzung der Nomenklatur der Referenz [106] kann Gleichung (2.58) zu

$$I_{\text{SI}}(\omega) = a(\omega) + c(\omega) e^{i\omega\tau} + c^*(\omega) e^{-i\omega\tau} \quad (2.60)$$

umgeschrieben werden. Hierbei wurden die folgenden Substitutionen benutzt:

$$a(\omega) := |E_1(\omega)|^2 + |E_2(\omega)|^2, \quad (2.61)$$

$$b(\omega) := 2 |E_1(\omega)| |E_2(\omega)|, \quad (2.62)$$

$$c(\omega) := \frac{1}{2} b(\omega) e^{i\Delta\varphi(\omega)}. \quad (2.63)$$

Durch Anwendung der Fouriertransformation auf Gleichung (2.60) und die Berücksichtigung des Fourier-Verschiebungs-Theorems erhält man einen Ausdruck der Form

$$FT \{I_{\text{SI}}(\omega)\} = a(t) + c(t - \tau) + c^*(t + \tau), \quad (2.64)$$

wobei $a(t)$ und $c(t)$ die Fouriertransformierten der entsprechenden frequenzabhängigen Funktionen $a(\omega)$ und $c(\omega)$ sind. Die drei Terme der Gleichung (2.64) entsprechen den drei Bändern in der fouriertransformierten Darstellung spektraler Interferogramme (siehe Abbildung 2.15). Durch die Einführung des zeitlichen Abstandes τ zwischen beiden Impuls-Repliken sind die Seitenbänder $c(t)$ bei $\pm\tau$ klar vom Basisband $a(t)$ bei $t = 0$ getrennt, solange die Impulsdauer deutlich kürzer als der Impulsabstand ist.

Durch die in Abbildung 2.15 dargestellte Filterfunktion kann eines der Seitenbänder [z.B. $c(t - \tau)$] isoliert werden. Eine inverse Fouriertransformation des herausgefilterten Seitenbandes führt zum Term $c(\omega) e^{i\omega\tau}$ der Gleichung (2.60). Wendet man nun die Argumentfunktion auf diesen Datensatz an, folgt aus Gleichung (2.63):

$$\varphi_{\text{SI}}(\omega) = \Delta\varphi(\omega) + \omega\tau = \arg \left[\frac{1}{2} b(\omega) e^{i(\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau)} \right]. \quad (2.65)$$

Der dominierende lineare Anteil $\omega\tau$ muss nun noch von der Interferogrammpphase abgezogen werden, um die gewünschte Dispersionsinformation $\Delta\varphi(\omega)$ zu erhalten.

Offensichtlich verwendet dieser Algorithmus lediglich die Phaseninformation des Interferogramms, was die Robustheit gegenüber Störungen der spektralen Amplitude erklärt. Eine Phasenmessung bleibt damit z.B. von einer frequenzabhängigen Detektionseffizienz des Experiments unbeeinflusst, solange die spektrale Modulation noch aufgelöst werden kann. Voraussetzung für eine erfolgreiche Phasenrekonstruktion ist eine klare Trennung der einzelnen Bänder in der Fourierdarstellung [siehe Abbildung 2.14 a)].

Das Prinzip der spektralen Scherung

Beim SPIDER-Verfahren gelingt nun das direkte Abtasten der spektralen Impulsphase über die Einführung einer spektralen Scherung, d.h. einer kleinen relativen Verschiebung der Trägerfrequenzen beider Impuls-Repliken. In Abbildung 2.16 ist das zugrundeliegende SPIDER-Prinzip schematisch dargestellt. Anders als bei der herkömmlichen spektralen Interferometrie bleibt die Phasenstruktur beider Impulse unangetastet. Eine relative Verschiebung der Gruppenfronten um den Scherungsbetrag $\Delta\omega$ führt bei physikalischen Impulsphasen zu einer Abweichung von konstanter Modulationsperiodizität im Interferogramm [siehe Abbildung 2.16 b)]. Wie gezeigt werden kann, enthält die Phase $\varphi_{\text{SI}}(\omega)$ des Interferogramms die frequenzabhängige Änderung

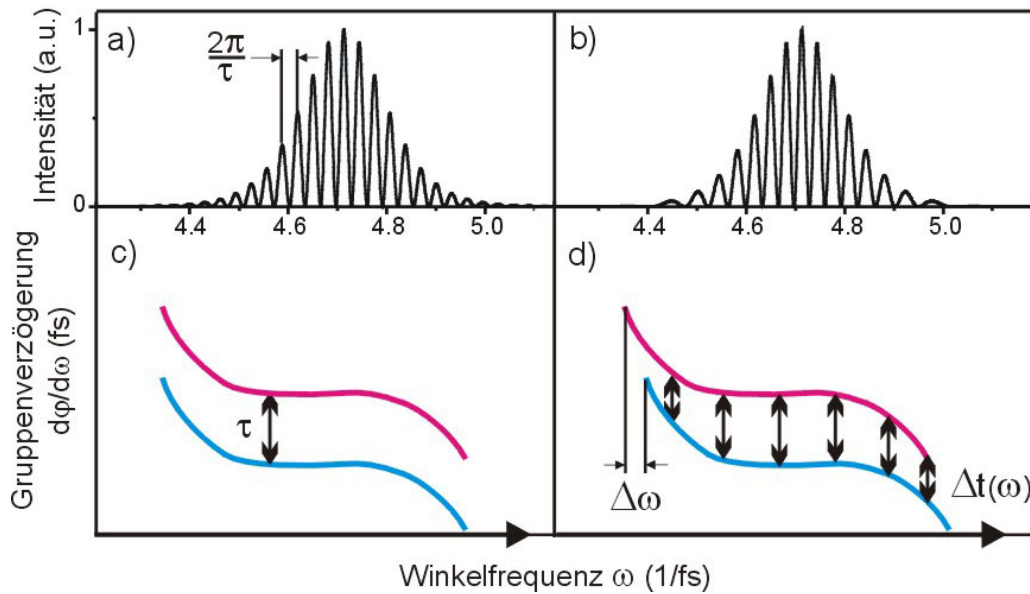


Abbildung 2.16: SPIDER-Interferogramme a) ohne Frequenzscherung (Referenzmessung) und b) mit Frequenzscherung. Die Einführung einer geringen spektralen Verschiebung $\Delta\omega$ zwischen den ansonsten identischen Impuls-Repliken führt i.d.R. zu einer nicht konstanten Modulationsperiode des Interferogramms in b). In dieser nun frequenzabhängigen Periodizität des SPIDER-Interferogramms ist die Änderung der spektralen Impulsphase in Schritten $\Delta\omega$ kodiert. c) und d) zeigen die zugehörigen Gruppenfronten des Impulspaares.

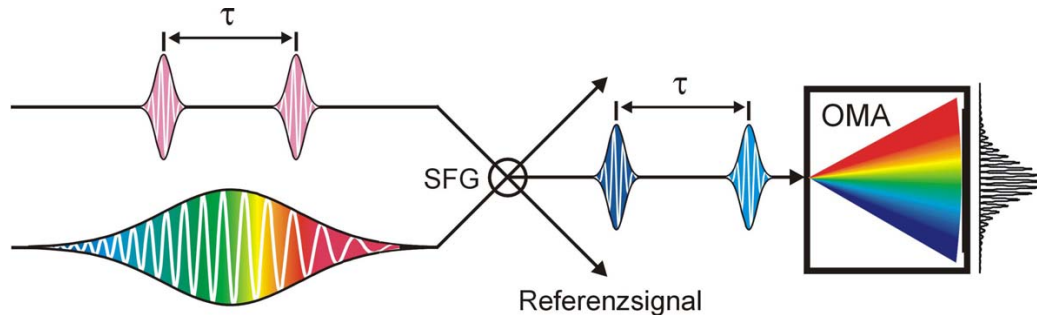


Abbildung 2.17: Schema eines SPIDER-Aufbaus: Zwei identische Repliken des Eingangsimpulses werden mit unterschiedlichen, praktisch monochromatischen Anteilen eines stark geschirpten Impulses aufkonvertiert. Dabei übersetzt sich der zeitliche Abstand τ der beiden Impulse in eine Verschiebung der Impulsspektren zueinander. Die beiden unterschiedlich frequenzverschobenen Impulse kommen dann im Spektrometer zur Interferenz (SFG: Summenfrequenzerzeugung im nichtlinearen Medium, OMA: Spektrometer).

der spektralen Impulsphase in Schritten $\Delta\omega$.

Abbildung 2.17 skizziert die Erzeugung einer spektralen Scherung zwischen den beiden Impuls-Repliken. Über Summenfrequenzbildung der beiden Impuls-Repliken mit einem stark gechirpten, dritten Impuls wird der zeitliche Impulsabstand τ gemäß

$$\Delta\omega = \frac{\tau}{\text{GDD}} \quad (2.66)$$

in eine spektrale Verschiebung $\Delta\omega$ zwischen den beiden aufkonvertierten Impulsen übersetzt. Üblicherweise wird der gechirpte Impuls ebenfalls aus dem zu charakterisierenden Impuls gewonnen, indem ein Teil des Eingangsimpulses durch ein dispersives Element (GDD) auf mehr als die Länge des Impulsabstandes τ gestreckt wird. Aufgrund dieses Abstandes τ erfolgt eine SFG der beiden Impuls-Repliken mit unterschiedlichen Frequenzkomponenten des gechirpten Impulses. Die beiden, um $\Delta\omega$ leicht spektral verschobenen, aufkonvertierten Impulse bilden in Analogie zu Gleichung (2.58) ein spektrales Interferenzmuster der Form

$$I_{\text{SPIDER}}(\omega) = |E(\omega)|^2 + |E(\omega + \Delta\omega)|^2 + 2 |E(\omega)| |E(\omega + \Delta\omega)| \times \cos[\varphi(\omega + \Delta\omega) - \varphi(\omega) + \omega\tau] . \quad (2.67)$$

Die im Kosinus-Term enthaltene Phaseninformation kann nun mit dem beschriebenen Algorithmus von Takeda et al. [106] über die Gleichung (2.65) separiert werden. Die Bestimmung des Impulsabstandes τ erfolgt mittels spektraler Interferometrie über die Aufnahme eines Interferogramms ohne spektrale Scherung, wie es in Abbildung 2.16 a) zu sehen ist. Nach Abzug des linearen Phasenanteils $\omega\tau$ gelingt die Rekonstruktion der spektralen Impulsphase $\varphi(\omega)$ in Schritten $\Delta\omega$ entlang der spektralen Achse, indem die gemessenen lokalen Phasenänderungen

$$\begin{aligned} \Delta\varphi(\omega_j) &= \varphi(\omega_j + \Delta\omega) - \varphi(\omega_j) \\ &= \varphi(\omega_{j+1}) - \varphi(\omega_j) \end{aligned} \quad (2.68)$$

aufsummiert werden. Ausgehend von einem Wert der Phase bei ω_j , erhält man demnach den Phasenwert an benachbarter Stelle $\omega_j + \Delta\omega$ über

$$\varphi(\omega_{j+1}) = \varphi(\omega_j) + \Delta\varphi(\omega_j) . \quad (2.69)$$

Beginnend mit einem beliebigen Startwert $\varphi(\omega_1)$ kann nun die spektrale Phase des Eingangsimpulses durch eine Verkettung der Phasendifferenzen $\Delta\varphi(\omega_j)$ rekonstruiert werden:

$$\varphi(\omega_{k+1}) = \varphi(\omega_1) + \sum_{j=1}^k \Delta\varphi(\omega_j) . \quad (2.70)$$

Auf diese Weise kann die spektrale Phase des Impulses bis auf einen konstanten Beitrag $\varphi(\omega_1)$ bestimmt werden. Da ein solcher Phasen-Offset die zeitliche Impulsform unbeeinflusst lässt, kann ihm ein beliebiger Wert zugeordnet werden.

Bei einer im Vergleich zur spektralen Bandbreite des Impulses relativ kleinen Scherung $\Delta\omega$ können die Phasendifferenzen $\Delta\varphi(\omega_j)$ näherungsweise über die erste Ableitung der spektralen Phase beschrieben werden [60]. Da ein Spektrometer das SPIDER-Interferogramm in wesentlich kleineren Frequenzschritten $d\omega \ll \Delta\omega$ als der spektralen Scherung auflöst, bietet sich praktischerweise eine Integration der Form

$$\varphi(\omega) \approx \frac{1}{\Delta\omega} \int \Delta\varphi(\omega) d\omega \quad (2.71)$$

an. Wie bereits aus Gleichung (2.71) ersichtlich ist, muss hier zusätzlich zur Summation der Kalibrationsfaktor $d\omega/\Delta\omega$ beachtet werden. Allerdings bietet eine solche Integration keinen Informationsgewinn, sondern stellt lediglich eine Interpolation dar.

Der letzte Schritt der Impulsrekonstruktion besteht in der Aufstellung des elektrischen Impulsfeldes im Spektralraum

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \left| \sqrt{I(\omega)} \right| e^{i\varphi(\omega)}, \quad (2.72)$$

wobei $I(\omega)$ das separat gemessene Impulsspektrum ist. Eine Fouriertransformation liefert dann das Impulsfeld in der Zeitdomäne.

Die Bedeutung der Referenzmessung:

Bereits geringe Fehler $\varepsilon(\omega)$ in der Wellenlängenkalibration des Spektrometers wirken sich auf die Interferogrammphase der SPIDER-Messung $\varphi_{\text{SPIDER}}(\omega) = \varphi(\omega + \Delta\omega) - \varphi(\omega) + \omega\tau + \varepsilon(\omega)$ aus, was zu einer fehlerbehafteten Phasenrekonstruktion führt. Das SPIDER-Verfahren bietet nun die Möglichkeit, den linearen Phasenteil $\omega\tau$ über eine Referenzmessung im SH-Spektralbereich nach Frequenzverdopplung des Impulspaares zu bestimmen. In Abbildung 2.17 ist der optische Referenzkanal neben dem SPIDER-Signal kenntlich gemacht. Da nun Referenzinterferogramm und SPIDER-Interferogramm spektral überlappen, wird für beide Messungen dieselbe Wellenlängenkalibration benutzt. Durch die Subtraktion der Referenzphase $\varphi_{\text{Ref}}(\omega) = \omega\tau + \varepsilon(\omega)$ von $\varphi_{\text{SPIDER}}(\omega)$ fällt somit, neben dem linearen Phasenteil $\omega\tau$, auch der Kalibrationsfehler weg. Zusätzlich reduziert dieses Vorgehen den Einfluss dispersiver Komponenten im SPIDER-Aufbau, die dazu führen, dass das Impulspaar aus nicht völlig identischen Repliken des Testimpulses besteht [60].

Der Grund hierfür liegt in der Tatsache, dass das Impulspaar der Referenzmessung den kompletten diagnostischen Aufbau und das Spektrometer auf gleichem Weg durchlaufen muss und selbst die Datenauswertung analog zur eigentlichen SPIDER-Routine verläuft.

Kapitel 3

Charakterisierung von Sub-10 fs-Impulsen: Weiterentwicklungen

Sämtliche der in Kapitel 2 vorgestellten Impulscharakterisierungsmethoden stoßen bei Impulsdauern unter 10 fs an ihre Grenzen. Einige der dabei auftretenden Probleme sind allgemeiner Natur, andere erweisen sich als spezifische Limitationen einer bestimmten Technik. Ein allgemeines Problem liegt in der enormen spektralen Bandbreite solch kurzer Impulse. Da zur Charakterisierung stets ein Prozess der Frequenzkonvertierung in einem nichtlinearen optischen Kristall nötig ist, liegt hier die Schwierigkeit in der Konversion der gesamten spektralen Bandbreite mit möglichst konstanter Effizienz. Ein weiteres Problem tritt durch die Komplexität der Impulsform in diesem Bereich extrem kurzer Impulsdauern auf. Häufig besteht dann der Impuls aus verschiedenen, z.T. klar getrennten Intensitätsspitzen, sowohl im Frequenz- als auch im Zeitraum. Sowohl beim FROG als auch beim SPIDER-Verfahren verursacht dies häufig eine fehlerhafte Phasenrekonstruktion des Impulses [107].

Die spezifischen Schwachstellen der klassischen SPIDER-Technik erwachsen aus der Auswertung der Modulation eines eindimensionalen Interferogramms. Stark modulierte Impulsspektren und spektral lokalisierte Intensitätseinbrüche im Impulsspektrum wirken sich störend auf ein SPIDER-Interferogramm aus und erschweren so eine korrekte Phasenrekonstruktion. Aber auch das klassische SHG-FROG enthält in diesem Bereich der Impulsdauer durch den in Kapitel 2.4.2 diskutierten Effekt der geometrischen Verschmierung eine methodisch bedingte Fehlerquelle. Des Weiteren führen die in diesem Regime häufig auftretenden komplexen Impulsformen zu einer vorzeitigen Stagnation

des iterativen Rekonstruktionsalgorithmus und damit zu höheren Fehlern in der Darstellung der Substruktur des Impulses.

Im vorliegenden Kapitel werden deshalb Lösungsvorschläge zur Beseitigung der genannten Schwachstellen der beiden Charakterisierungsverfahren diskutiert. So wird zunächst ein optimierter SPIDER-Aufbau vorgestellt, der sowohl in Hinblick auf Empfindlichkeit und Dynamikbereich der Messung ein verbessertes Konzept darstellt als auch die Messbarkeit spektral stark modulierter Impulse erleichtert [108, 109]. Anschließend wird dieses Verfahren durch empfindliche Dispersionsmessungen und die Charakterisierung eines Sub-5-fs-Impulses getestet. Ein völlig neues SPIDER-Verfahren, das selbst bei spektral breitbandigen Impulsen mit geringer spektraler Auflösung arbeiten kann, wird im Anschluss eingeführt [110]. Im zweiten Teil des Kapitels wird ein neues FROG-Verfahren behandelt, das auf einem kollinearen Typ-I phasenangepassten SHG-FROG-Aufbau beruht [111, 112]. Diese Methode vermeidet den Fehler der geometrischen Verschmierung des Impulses und ist in der Lage, die komplexe Struktur eines ultrakurzen Impulses verbessert aufzulösen. Ein großes Potenzial dieses Verfahrens liegt auch im Ansatz einer direkten Impulsrekonstruktion, die eine vergleichsweise langsame iterative Rekonstruktion ersetzen könnte [113]. Abschließend wird der aktuelle Entwicklungsstand der verschiedenen Verfahren an einer repräsentativen Messung vergleichend diskutiert [114].

3.1 Der optimierte SPIDER-Aufbau

In diesem Abschnitt wird ein SPIDER-Konzept vorgestellt, das für die Vermessung ultrakurzer Impulse im Bereich von 4 fs bis 40 fs geeignet ist und eine Weiterentwicklung des Kurzimpuls-SPIDERS der Referenz [93] darstellt. Eine wesentliche Verbesserung beruht auf einem optimierten Strahlteilungsverhältnis zur Signalerhöhung in Kombination mit einer hohen spektralen Auflösung. Die Verwendung eines dünnen Etalons zur Erzeugung der Impulsrepliken ersetzt das Michelson-Interferometer durch eines vom Fabry-Perot-Typ, das frei vom Problem der Interferometerdrift ist. Eine einmalige Kalibration des Aufbaus ist daher ausreichend. Der planare Strahlengang vereinfacht zusätzlich den Aufbau und die Justage.

Abbildung 3.1 zeigt das Schema des verwendeten experimentellen Aufbaus, der speziell für spektral breitbandige Impulse dispersionsarm konzipiert ist. Im Normalbetrieb wird 0,1% der Energie des senkrecht polarisierten Eingangsimpulses durch einen Inconel-beschichteten Strahlteiler transmittiert

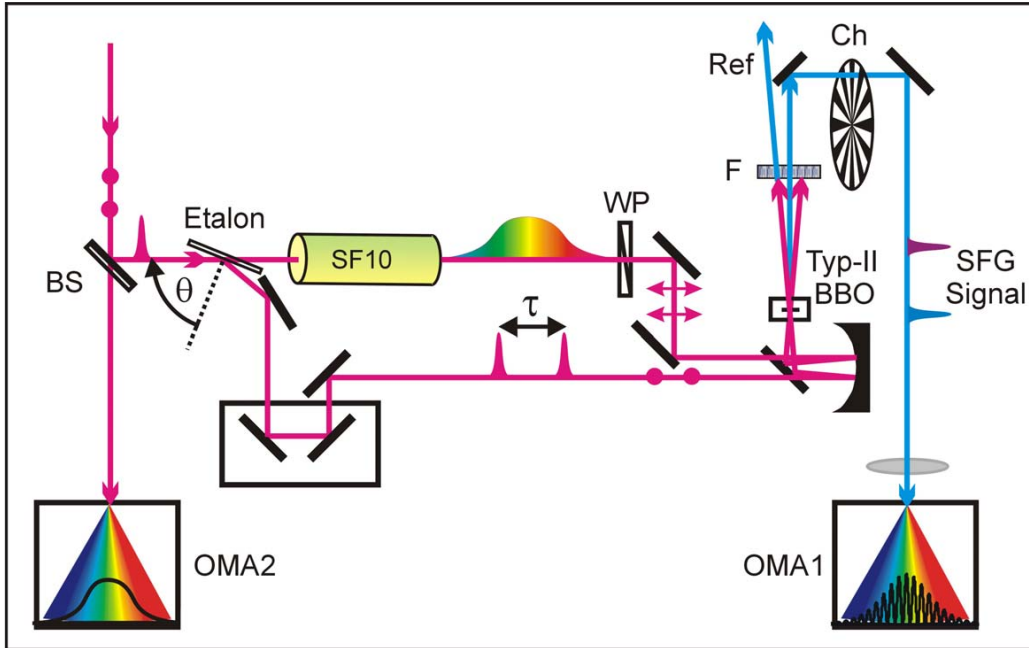


Abbildung 3.1: Experimenteller SPIDER-Aufbau. Die Verwendung des Choppers bei einer SPIDER-Messung über eine Vielzahl von Kameraschüssen führt bei Anwendung des Algorithmus der Abbildung 3.4 zu einem erhöhten Dynamikbereich (BS: Strahlteiler, SF10: SF10 Glasblock, WP: $\lambda/2$ -Wellenplatte, F: Filter BG39, Ch: Chopper, OMA: Spektrometer, Ref: Referenzsignal zur Kalibration).

und dient anschließend zur Messung der spektralen Leistungsdichte des Impulses (OMA2). Der Hauptanteil der Impulsenergie wird in den SPIDER-Aufbau reflektiert. Anstelle eines Michelson-Interferometers, wie es in Referenz [93] zum Einsatz kam, dient nun ein dünnes Glasplättchen (Etalon) der Erzeugung der Impulsrepliken. Unter Ausnutzung der spektral breitbandigen Fresnel-Reflexion bildet der erste Front- und Rückseitenreflex ein ideal kollinear propagierendes Impulspaar mit konstantem und reproduzierbarem Impulsabstand τ . Damit ist das Problem der Interferometerdrift, das häufige Kalibrationsmessungen der Referenzphase zur τ -Bestimmung nötig machte, umgangen. Das Etalon wird im Bereich des Einfallswinkel θ zwischen 60° und 70° betrieben, was im Falle senkrechter Polarisation bezüglich der beiden Oberflächenreflexe zu einer Reflektivität von ca 20% führt. Dieses relativ symmetrische Teilungsverhältnis erhöht die Effizienz der Methode um etwa eine Größenordnung im Vergleich zu anderen SPIDER-Varianten [115, 91]. Eine quantitative Untersuchung des θ -abhängigen Effizienzverhaltens der SPIDER-Methode wird in diesem Kapitel vorgestellt.

Die Dicke d des Etalons (Brechungsindex n) definiert zusammen mit dem Einfallswinkel θ den zeitlichen Abstand τ beider Impulsrepliken:

$$\tau = \frac{2dn}{c_0} \sqrt{1 - (\sin \theta / n)^2} \quad (3.1)$$

und damit die Modulationsperiode $2\pi/\tau$ des Interferogramms. In den nachfolgend vorgestellten Messungen kamen zwei verschiedene Etalondicken $d_1 = 50 \mu\text{m}$ und $d_2 = 150 \mu\text{m}$ zum Einsatz, was zu entsprechenden Impulsabständen $\tau_1 = 390 \text{ fs}$ und $\tau_2 = 1285 \text{ fs}$ führt. Der Grund für die Wahl eines relativ dicken Etalons (d_2) liegt in der Notwendigkeit einer möglichst kleinen interferometrischen Modulationsperiode für eine fehlerfreie SPIDER-Messung spektral stark modulierter Superkontinuumsimpulse. Abbildung 3.2 stellt den Vorteil des $150 \mu\text{m}$ -Etalons heraus, das eine interferometrische Modulation außerhalb spektraler Intensitätsvariation eines Hohlfaserkontinuums erzeugt.

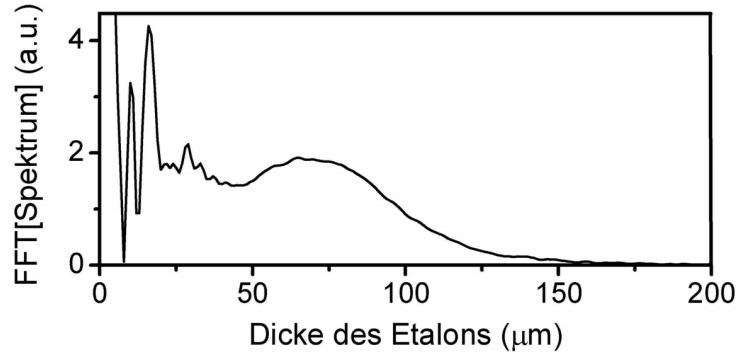


Abbildung 3.2: Fouriertransformierte Darstellung eines Impulsspektrums hinter einem einstufigen Hohlfaserkompressor (siehe Kapitel 4). Die Zeitachse wurde über Gleichung (3.1) für den Fall eines Einfallswinkels von $\theta = 70^\circ$ in die Etalondicke umgerechnet.

Etwa 50% der Energie des Impulses passiert das Etalon. Anschließend wird dieser transmittierte Impuls durch einen 10 cm langen SF10-Glasblock ($\text{GDD} = 15800 \text{ fs}^2$) dispersiv gestreckt. Eine achromatische (600 nm - 1200 nm) $\lambda/2$ -Wellenplatte dreht die Polarisation dieses nun stark gecirpten Impulses um 90° , um eine breitbandige Typ-II-Phasen Anpassung im BBO-Kristall zu gewährleisten. Im Strahlengang der beiden Impulsrepliken kommt ausschließlich breitbandig reflektierende Optik zum Einsatz. Summenfrequenzbildung bei zeitlicher Überlagerung der beiden Impulsrepliken mit dem stark gecirpten Impuls im $50 \mu\text{m}$ dicken Typ-II BBO-Kristall führt zu einer spektralen Scherung von $\Delta\nu_{\text{shear } 1} = 3,9 \text{ THz}$ bzw. $\Delta\nu_{\text{shear } 2} = 13 \text{ THz}$ (entspre-

chend den verschiedenen Impulsabständen τ_1 und τ_2) zwischen den aufkonvertierten Impulsrepliken. Das SPIDER-Signal wird dann in einem 0,5-m-Spektrometer (OMA1: Acton 500i, Gitter: 300 Linien/mm, Blaze-Winkel für 500 nm) spektral zerlegt und über eine schnelle 2048 „tall-pixel“ CCD-Kamera (8 bit, Pixelgröße: $13 \times 500 \mu\text{m}$) detektiert. Der mit einem Kameraschuss abgedeckte SHG-Spektralbereich von 175 nm Breite bei einer Zentralwellenlänge von 390 nm reicht zur Analyse eines oktavenbreiten Spektrums im fundamentalen Wellenlängenbereich, zentriert bei 800 nm.

Der in Abbildung 3.1 vorgestellte SPIDER-Aufbau wird über die Aufnahme eines Interferogramms des Referenzsignals (Ref) kalibriert, welches aus dem SHG-Signal der beiden Impulsrepliken gebildet wird. Eine solche Selbstkalibrierung kompensiert u.a. den Effekt der zusätzlichen Etalon-Dispersion (ca $4,5 \text{ fs}^2$ beim $50 \mu\text{m}$ -Etalon und 13 fs^2 beim $150 \mu\text{m}$ -Etalon) auf den zweiten Satellitenimpuls in Reflexion.

3.1.1 Phasenempfindliche Rauschunterdrückung

Durch die Aufnahme eines eindimensionalen Datensatzes für die Rekonstruktion der spektralen Phase ist die SPIDER-Methode besonders anfällig gegenüber extremen Variationen in der spektralen Amplitude eines Impulses. So weisen Weißlichtkontinua häufig scharfe Einbrüche im Spektrum auf. An diesen Stellen des Impulsspektrums ist die spektrale Leistungsdichte im Vergleich zu benachbarten Regionen zum Teil um bis zu zwei Größenordnungen reduziert. Solche lokalen spektralen Einbrüche übersteigen leicht den Dynamikbereich der Detektion, was dann an diesen Stellen zum Verlust der Modulationskohärenz im Interferogramm führt.

In der Vergangenheit wurde dieser Fehlerursache mit hohem Aufwand, unter Verwendung verstärkter CCD-Kameras und über eine Aneinanderkettung der SPIDER-Spuren verschiedener spektraler Messbereiche zur Verbesserung der spektralen Auflösung, begegnet [51, 95]. In diesem Abschnitt wird eine einfachere Methode zur Verbesserung des Dynamikbereiches einer SPIDER-Messung vorgestellt. Diese Methode kommt mit einer ungekühlten 8-bit Zeilenkamera aus. Die Rauschunterdrückung gelingt dann über eine phasenempfindliche Mittelung ähnlich einer Lock-In-Detektion, die gleichzeitig für 2048 Detektoren (Pixel der CCD-Kamera) realisiert wird und auf einer Heterodyne-Messung beruht.

Messung und Analyse

Abbildung 3.3 zeigt zwei verschiedene spektrale Interferogramme, die auf demselben Satz von 10000 aufeinander folgenden Kameraschüssen (Belichtungszeit $\delta t = 5$ ms pro Schuss) beruhen. Bei der zugrundeliegenden Messung wurde die spektrale Leistungsdichte $I(\lambda, t) = dP(\lambda, t)/d\lambda$ sowohl der SPIDER-Spur als auch der SHG-Referenzspur mit einer Schussfrequenz der CCD-Kamera von 200 Hz zu den Zeiten $t_i = i\delta t$, ($i = 1 \dots N$, $N = 10000$) aufgenommen. Gleichzeitig wurde das Detektionssignal mit einer Frequenz von $f_{\text{chop}} \approx 85$ Hz, die etwas kleiner als die Nyquist-Frequenz $f_0 = 1/2\delta t$ ausfallen muss, gechoppt (siehe Abbildung 3.1).

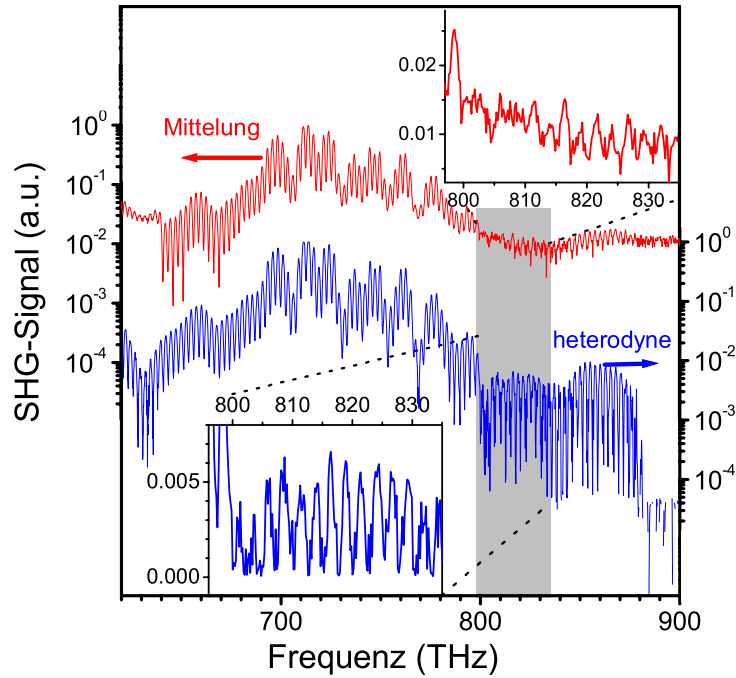


Abbildung 3.3: Messung zweier spektraler Interferogramme eines Paares identischer Impulse nach Frequenzverdopplung (SPIDER-Referenzmessung): Die rote Spur $I_{\text{ave}}(\lambda)$ (oberes Interferogramm) wurde durch eine einfache Mittelung über 10000 Spektren nach Gleichung (3.4) gewonnen. Im vergrößerten Bereich um 800 THz (rechts oben) ist der Verlust der Interferogramm-Modulation deutlich zu erkennen. Die blaue Spur $I_{\text{het}}(\lambda)$ (unteres Interferogramm) wurde nach Gleichung (3.3) phasenempfindlich aus demselben Satz von 10000 Spektren konstruiert. Der vergrößerte Ausschnitt verdeutlicht den erhöhten Kontrast der Modulation.

Der sich nun anschließende Algorithmus der Auswertung ist in Abbildung 3.4 skizziert. Zur Rauschunterdrückung wird das aufgenommene Daten-Array

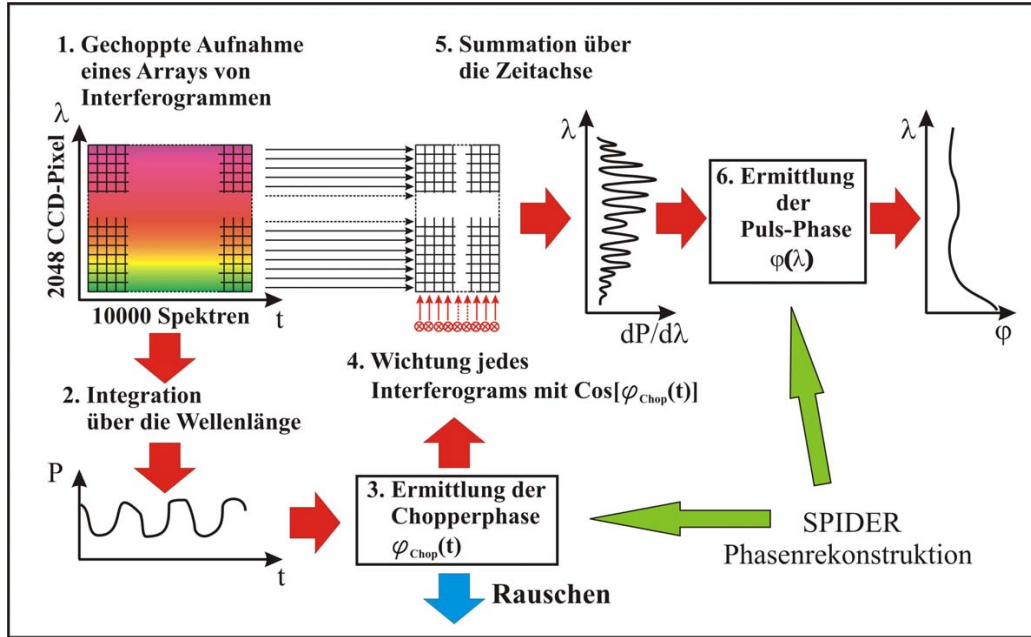


Abbildung 3.4: Schema der SPIDER-Auswertung einer gepchoppten Messung. Der Phasenrekonstruktionsalgorithmus des SPIDER-Verfahrens wird zweimal auf die aufgenommenen Interferogramme angewandt: In der ersten Stufe wird dabei analog zur Lock-In-Technik das Signal vom Rauschen getrennt (Schritt 2 bis 5), während die zweite Stufe in der Phasenrekonstruktion aus dem „gereinigten“ Interferogramm besteht (Schritt 6).

$I(\lambda, t_i)$ zunächst entlang der Wellenlänge λ aufintegriert (Schritt 2 in Abb. 3.4). Spektralbereiche mit großen Interferogrammmamplituden tragen hier zur Rekonstruktion der Sinus²-förmigen Chopperfunktion $P(t)$ bei. Die genaue zeitliche Phase des Choppers kann durch die anschließende Anwendung des Takeda-Algorithmus [106] auf $P(t)$ längs der zeitlichen Achse t ermittelt werden (Schritt 3 in Abb. 3.4):

$$\varphi_{\text{chop}}(t) = \arg \left[\int_{\omega=\pi f_{\text{chop}}}^{2\pi f_0} \exp(-i\omega t) \int_{t=0}^{N\delta t} \exp(i\omega t) \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} I(\lambda, t) d\lambda dt d\omega \right]. \quad (3.2)$$

Die Grenzen der spektralen Detektion durch das Spektrometer sind als $\lambda_{1,2}$ kenntlich gemacht. Eine Multiplikation jedes der aufgenommenen Spektren $I(\lambda, t_i)$ mit dem zugehörigen Wert des Kosinus der Chopperphase $\varphi_{\text{chop}}(t_i)$ wichtet den jeweiligen Datensatz (Schritt 4 in Abb. 3.4). Bloßes Untergrundrauschen im Falle einer Signalblockierung durch das Chopperrad wird dadurch mit einem negativen Vorzeichen versehen. Integriert man nun die spek-

tralen Leistungsdichten über t , kommt es damit zu einer effektiven Rauschunterdrückung an jedem Punkt der Wellenlängenachse $\lambda_1 < \lambda < \lambda_2$ (Schritt 5 in Abb. 3.4):

$$I_{\text{het}}(\lambda) = \int_{t=0}^{N\delta t} I(\lambda, t) \cos \varphi_{\text{chop}}(t) dt. \quad (3.3)$$

Das so isolierte rauscharme Interferogramm kann nun zur weiteren Auswertung im Rahmen des SPIDER-Algorithmus herangezogen werden (Schritt 6 in Abb. 3.4). Im Allgemeinen wird dieses Verfahren der phasenempfindlichen Rauschunterdrückung sowohl auf die SPIDER-Messung als auch auf die Referenzmessung angewendet. Die Effizienz der vorgestellten Methode wird insbesondere im direkten Vergleich mit einer bloßen Mittelung des Datensatzes, beruhend auf einer reinen Aufintegration der Spektren, deutlich:

$$I_{\text{ave}}(\lambda) = \int_{t=0}^{N\delta t} I(\lambda, t) dt. \quad (3.4)$$

Experimentelle Ergebnisse

Der Vorteil einer phasenempfindlichen Interferogrammdetektion stellt sich am experimentellen Beispiel der Abbildung 3.3 heraus, die einen direkten Vergleich der Funktionen $I_{\text{ave}}(\nu)$ und $I_{\text{het}}(\nu)$ zulässt. Dargestellt ist das Interferogramm einer Referenzmessung, das über die Frequenzverdopplung der beiden Oberflächenreflexionen des Etalons im SHG-Spektralbereich des Impulsspektrums aufgenommen wird. Im Vergleich zu einer einzelnen Spur $I(\nu, t_i)$ sollte eine ideale Mittelung über $N = 10000$ solcher Spektren additives Rauschen, z.B. verursacht durch den Dunkelstrom der CCD-Kamera, um einen Faktor $\sqrt{N} = 100$ reduzieren. Einfaches Aufsummieren der Spektren gemäß Gleichung (3.4) summiert jedoch sowohl Signal als auch Rauschen. Das Signal-Rausch-Verhältnis bleibt demnach das gleiche wie im Falle einer einzelnen Messung, und lediglich multiplikatives Rauschen, verursacht z.B. durch Schwankung der Laserleistung, wird unterdrückt.

Ein Vergleich der beiden Spuren der Abbildung 3.3 verdeutlicht, dass die phasenempfindliche Mittelung über Gleichung (3.3) das Untergrundrauschen effektiv beseitigt. Besonders in der Umgebung der Frequenz von 800 THz führt die phasenempfindliche Rauschunterdrückung zu qualitativen Unterschieden zwischen den beiden Spuren (vergrößerter Bereich der Abbildung 3.3). Es ist auch zu beachten, dass die vorgestellte Methode den Modulationskontrast im Bereich starker Signale (z.B. bei 700 THz) nicht verbessern

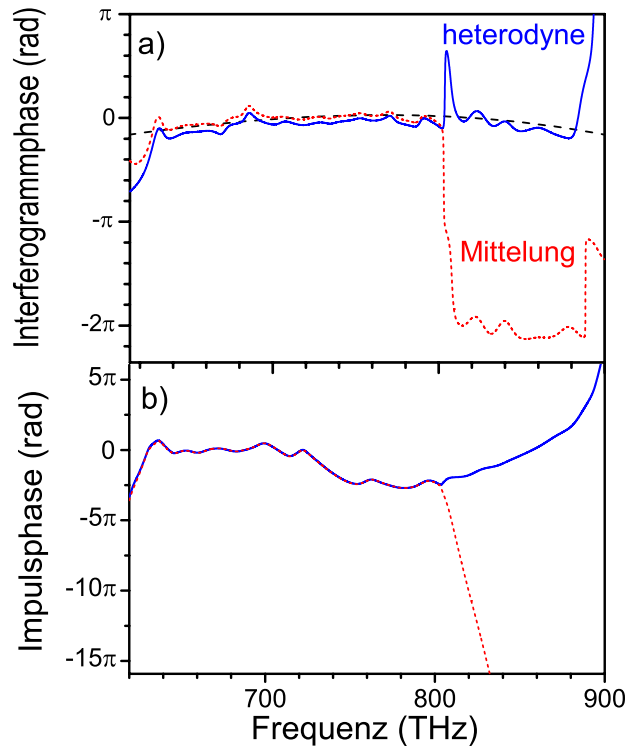


Abbildung 3.5: Phasenauswertung der Interferogramme der Abbildung 3.3. a) Rekonstruierte Interferogrammphasen; zur besseren Lesbarkeit wurde der lineare Phasenanteil $\omega\tau$ bereits abgezogen. b) Rekonstruierte Impulsphase nach der Differenzbildung zwischen der SPIDER-Phase (nicht gezeigt) und der Referenzphase aus a).

kann. Dieser Effekt ist durch die Justage des Interferometers, der Spektrometerraufösung und durch Änderungen der spektralen Impulsphase von Schuss zu Schuss beschränkt. Die phasenempfindliche Mittelung kann diese Einflüsse nicht kompensieren. In Bereichen geringer spektraler Intensität, wie der grau unterlegten Zone der Abbildung 3.3, vermindert diese Methode jedoch das Verschwinden der Interferenzstruktur im Untergrundrauschen.

Abbildung 3.5 a) zeigt die Phasenrekonstruktion beider Interferogramme nach Abzug der linearen Komponente $\omega\tau$ und verdeutlicht die Auswirkung des geringeren Signal-Rausch-Verhältnisses der gemittelten Messung $I_{\text{ave}}(\nu)$. Aufgrund schlechter Modulationsauflösung kommt es in diesem Falle bei $\nu = 800$ THz zu einem fehlerhaften 2π -Phasensprung, d.h. zum Überspringen einer Modulationsperiode. Da das Interferogramm aus zwei praktisch identischen Impulsen gebildet wurde, kann ein solcher Phasensprung einzig

im Verlust der Phasenkohärenz zwischen den beiden getrennten Spektralbereichen erklärt werden. Die Auswirkung eines solchen Phasensprungs in SPIDER- oder Referenzmessung auf die rekonstruierte spektrale Impulsphase ist in Form eines Phasenknicks in Abbildung 3.5 b) aufgezeigt. Ein solcher Phasenknick entspräche zwei zeitlich getrennten spektralen Bereichen, d.h. einem Doppelimpuls, und stellt damit ein völlig abweichendes, falsches Impulsprofil dar. Im Gegensatz hierzu reicht die Auflösung der Modulationsstruktur bei 800 THz im Falle der phasenempfindlichen Rauschunterdrückung zur Vermeidung eines 2π -Phasensprungs. Tatsächlich tauchen derartige Rekonstruktionsartefakte nun erst in Bereichen auf, in denen die spektrale Leistung auf 10^{-4} des maximalen Signals abgesunken ist. Der Dynamikbereich der Messung wurde demnach effektiv um zwei Größenordnungen erweitert, was eine Überbrückung tiefer spektraler Senken bei der Phasenrekonstruktion erleichtert. Hinzu kommt, dass eine Messung nun auch über einen breiteren Spektralbereich gelingen kann, die Phase also weiter in die intensitätsarmen spektralen Randbereiche hinein rekonstruiert werden kann.

3.1.2 Optimierung der Empfindlichkeit

In diesem Abschnitt wird ein optimales Strahlteilungsverhältnis zur Maximierung der Empfindlichkeit einer SPIDER-Messung abgeschätzt. Basierend auf einer Strahlteilung über Fresnel-Reflexionen an einem dünnen Glas-Etalon wird eine allgemeine Beziehung zwischen dem Einfallswinkel θ und der SPIDER-Signalstärke aufgezeigt. Zur Empfindlichkeitsoptimierung des SPIDER-Aufbaus der Abbildung 3.1 muss der Einfallswinkel θ des senkrecht polarisierten Eingangsimpulses auf das Etalon so gewählt werden, dass die durch Fresnel-Reflexionen entstandenen Impulsrepliken zusammen mit dem transmittierten Impuls ein maximales Summenfrequenzsignal erzeugen.

Zunächst wird der in Abbildung 3.6 a) skizzierte Standardfall untersucht, in dem die beiden Impulsrepliken in einem Michelson-Interferometer erzeugt werden [93]. In diesem Beispiel wird der Aufkonvertierungsimpuls am Strahlteiler M1 vom Testimpuls getrennt. Anschließend kommt es am Strahlteiler M2 des Michelson-Aufbaus zur Bildung der zwei Impulsrepliken. Die Reflexivität der Feldamplituden von M1 und M2 wird als r_1 und r_2 und die entsprechende Transmission als $t_i = \sqrt{1 - r_i^2}$ definiert, während für die Leistungsreflexivität und Transmission entsprechend $R_i = r_i^2$ und $T_i = t_i^2$ gilt. Das Signal in Reflexion hinter M2 kann dann als

$$E_{\text{refl}} = r_1 r_2 t_2 (1 + e^{i\varphi}) E_{\text{in}} \quad (3.5)$$

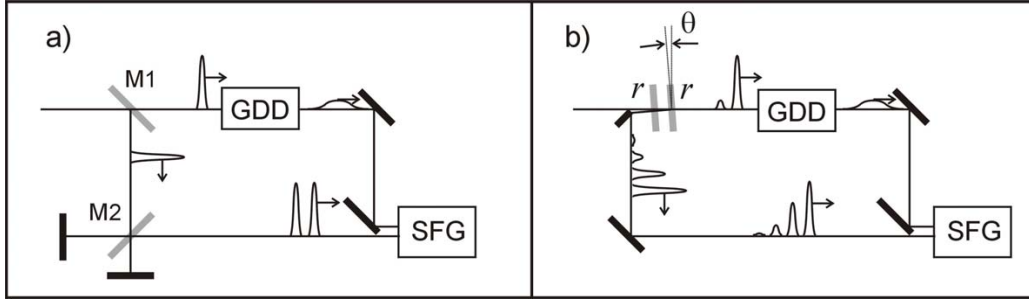


Abbildung 3.6: Schema zweier häufig verwendeter SPIDER-Varianten. a) Michelson-Typ: Die beiden Impulsrepliken werden in einem Michelson-Interferometer mit dem Strahlteiler M2 erzeugt, während der Impuls zur Aufkonvertierung vorher über den Strahlteiler M1 abgezweigt wird. b) Fabry-Perot-Typ: Die Strahlteilung und Erzeugung der beiden Impulsrepliken erfolgt über Fresnel-Reflexionen an einem dünnen Glasplättchen (M1, M2: Strahlteiler, GDD: dispersives Element, SFG: Summenfrequenzbildung).

geschrieben werden, wobei $\varphi = 2\Delta L\omega/c$ für den, durch den Längenunterschied ΔL zwischen beiden Interferometerarmen hervorgerufenen Phasenunterschied, ω für die Winkelfrequenz und c für die Lichtgeschwindigkeit steht. E_{in} gibt die Eingangsfeldstärke an. Unter Berücksichtigung des transmittierten Feldes $E_{\text{trans}} = t_1 E_{\text{in}}$ erhält man die spektrale Übertragungsfunktion der in Abbildung 3.6 a) skizzierten Strahlteilung:

$$\xi = \left| E_{\text{refl}} E_{\text{trans}} / E_{\text{in}}^2 \right|^2 = 2R_1 R_2 T_1 T_2 (1 + \cos \varphi) . \quad (3.6)$$

Das transmittierte Signal E_{trans} kann aufgrund der dispersiven Streckung als monochromatisch angesehen werden. Gleichung (3.6) enthält nun eine Modulationskomponente, die vom Abstand der Impulsrepliken $2\Delta L/c$ abhängt und deren Amplitude gleich der des unmodulierten (dc) Anteils ist, was einer 100%-ig durchmodulierten SPIDER-Spur entspricht. Der angestrebte Idealfall tritt bei $R_1 = R_2 = 0,5$ ein, bei dem die Amplitude des Kosinusters der Gleichung (3.6) den maximalen Wert von 0,125 annimmt. Die Verwendung einer Fresnel-Reflexion an der Position von M1 ($R_1 = 0,05$) [93] reduziert hingegen die Effizienz um eine Größenordnung.

Etwas anders verhält sich der Fall der Abbildung 3.6 b), in dem alle notwendigen Impulse mit Hilfe eines dünnen Etalons in einem Schritt erzeugt werden. Hier kann das transmittierte Feld aus der Summe aller transmittierten Satellitenimpulse über die geometrische Reihe gebildet werden:

$$E_{\text{trans}} = \frac{(1 - r^2) e^{i\varphi/2}}{1 - r^2 e^{i\varphi}} E_{\text{in}} . \quad (3.7)$$

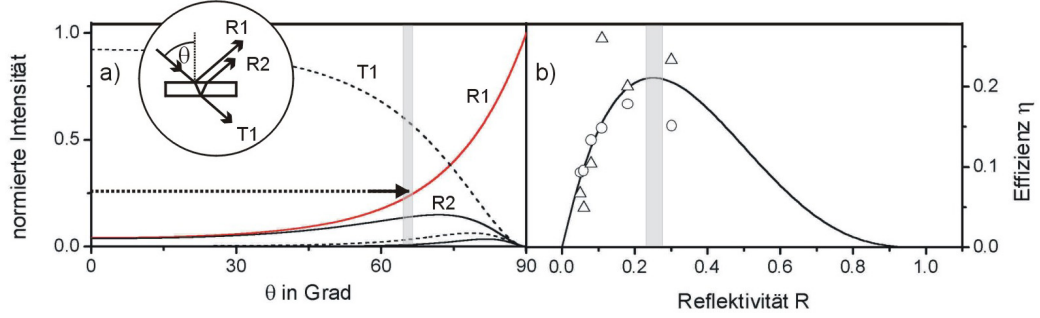


Abbildung 3.7: Untersuchung des Effizienzverhaltens eines SPIDER-Aufbaus vom Fabry-Perot Typ; a) Reflexions- (durchgezogene Linie) und Transmissionsvermögen (gestrichelte Linie) eines dünnen Glas-Etalons; neben den drei für das SPIDER-Verfahren relevanten Signalen R1, R2 und T1 sind zusätzlich noch die darauf folgenden Signale T2 und R3 eingezeichnet. b) Effizienzkurve des SPIDER-Signals; die maximale Effizienz von 0,21 tritt bei $R = 0,25$ ein, was bei einem Vergleich mit der roten Kurve R1 in a) unter einem Einfallswinkel von $\theta = 67^\circ$ gegeben ist. Die eingezeichneten Datenpunkte stellen angepasste experimentelle Werte dar, die in 10° -Schritten zwischen $20^\circ \leq \theta \leq 70^\circ$ aufgenommen wurden [Messungen mit einem $150 \mu\text{m}$ Etalon (Kreise) und einem $50 \mu\text{m}$ Etalon (Dreiecke)]. Das Teilbild in a) zeigt die Geometrie der Strahlteilung am Etalon.

Das Gleiche gilt für die Summe aller reflektierten Satellitenimpulse:

$$E_{\text{refl}} = \frac{r(e^{i\varphi} - 1)}{1 - r^2 e^{i\varphi}} E_{\text{in}}. \quad (3.8)$$

Die Phasendifferenz $\varphi = 2\Delta L n(\omega)\omega/c$ wird hier durch zweifaches Durchlaufen des Etalons mit dem Brechungsindex $n(\omega)$ entlang der Strecke ΔL verursacht [116]. Der wesentliche Vorteil eines solchen Etalons ist die Vermeidung einer Drift dieser Phase φ , wie sie z.B. ein Michelson-Aufbau verursacht. Auch ist die Reflektivität $R = r^2$ in gewissen Grenzen durch die Wahl des Einfallswinkels θ einstellbar. Ein optimales Strahlteilungsverhältnis muss daher gefunden werden.

Beim Fabry-Perot-Typ wird das gesuchte SPIDER-Signal aus den drei intensivsten Signalen der Strahlteilung gebildet. Diese sind in Abbildung 3.7 a) in Reflexion mit R1 und R2 und in Transmission mit T1 bezeichnet. Unter Vernachlässigung aller weiteren Satellitenimpulse verkürzt sich Gleichung (3.7) zu

$$E_{\text{trans}} = (1 - r^2) E_{\text{in}} \quad (3.9)$$

und Gleichung (3.8) zu

$$E_{\text{refl}} = \left[r \left(1 - r^2 \right) e^{i\varphi} - r \right] E_{\text{in}}. \quad (3.10)$$

Analog zum Michelson-Typ kann nun die spektrale Übertragungsfunktion $\eta = |E_{\text{refl}} E_{\text{trans}} / E_{\text{in}}^2|^2$ für die Fabry-Perot-Strahlteilung zu

$$\eta = 2R(R-1)^3 \left[\frac{(R-1)^2 + 1}{2(R-1)} - \cos \varphi \right] \quad (3.11)$$

bestimmt werden. Gleichung (3.11) vernachlässigt alle weiteren modulatorischen Komponenten, die durch weitere Fresnel-Reflexionen im Etalon verursacht werden. Wie Gleichung (3.6) besteht auch die Gleichung (3.11) aus einer Konstanten sowie einem modulatorischen Term. Die Amplitude $2R(R-1)^3$ dieser Modulation ist als durchgezogene Linie in Abbildung 3.7 b) eingezeichnet. Durch Ableitung dieser Funktion lässt sich das Intensitätsmaximum mit dem Wert 0,21 bei $R = 0,25$ lokalisieren, was einem Einfallswinkel von $\theta = 67^\circ$ entspricht. Offensichtlich fällt der ermittelte Maximalwert beim Fabry-Perot-Konzept höher aus als beim Michelson-Typ, wo stets ein Teil des Lichtes in Eingangsrichtung zurückreflektiert wird. Ein Fabry-Perot-Aufbau geht deshalb effizienter mit der zur Verfügung stehenden Leistung um, da fast das gesamte Licht in Reflexion und Transmission genutzt wird.

3.1.3 Test des optimierten SPIDER-Aufbaus

Als Test des vorgestellten SPIDER-Verfahrens wurden analog zur ersten Demonstration der SPIDER-Technik [60] Messungen mit und ohne zusätzliche Materialdispersion im Strahlengang durchgeführt. Eine Abschätzung der Phasenempfindlichkeit kann mittels eines $200 \mu\text{m}$ dünnen Mikroskop-Deckgläschens (BK7), das eine Dispersion von $\text{GDD} = 10 \text{ fs}^2$ aufweist, durchgeführt werden. Abbildung 3.8 a) zeigt eine SPIDER-Messung, in der die Auswirkung der geringen zusätzlichen Dispersion des Glasplättchens auf die Impulsphase klar aufgelöst ist. Der Phasenunterschied zwischen den Messungen mit und ohne zusätzliche Dispersion ist in Abbildung 3.8 b) gepunktet eingezeichnet. Die Abweichung dieser Kurve vom berechneten Verhalten beläuft sich im RMS-Mittel auf etwa 200 mrad und entspricht damit dem in Referenz [60] enthaltenen Wert, der jedoch mit einer 100-fach höheren Dispersion und geringerer spektraler Bandbreite aufgenommen wurde.

In der vorgestellten Messung beträgt der Fehler in der Dispersionsbestimmung lediglich 1 fs^2 , was einer Dispersion von $20 \mu\text{m}$ Glas bzw. 5 cm Luftstrecke entspricht. Wichtig ist diese Abschätzung besonders für den Charakterisierungsbereich von Impulsdauern unter 5 fs . In diesem Regime entspricht

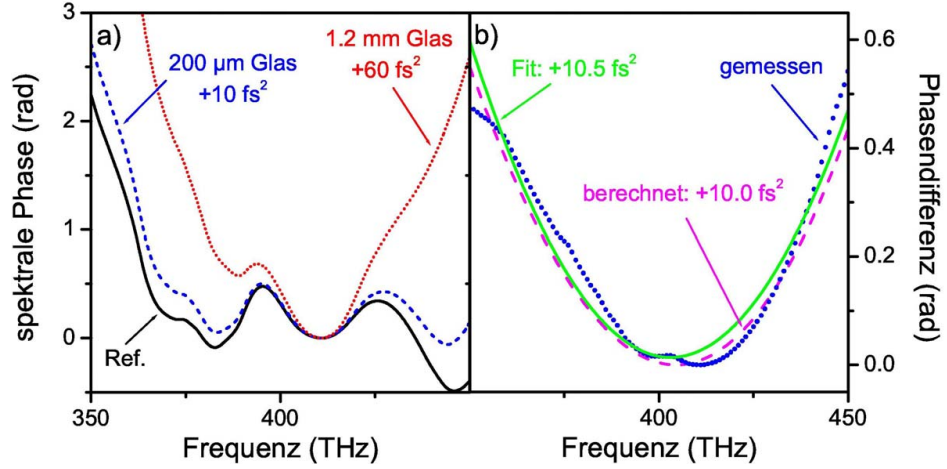


Abbildung 3.8: Dispersionsmessung mit der SPIDER-Methode. a) Ermittelte spektrale Impulsphasen bei unterschiedlicher zusätzlicher Dispersion (GDD) im Strahlengang. Die durchgezogene, schwarze Linie markiert die Impulsphase ohne zusätzliches Glas im Strahlengang (Ref.: Referenzmessung). b) Spektrale Phasenänderung bei $GDD = 10 \text{ fs}^2$ (blau gepunktet). Die berechnete Phasendifferenz ist als gestrichelte Linie in Magenta dargestellt. Der Unterschied zwischen Theorie und einem Fit der Messdaten (grüne, durchgezogene Linie) beträgt lediglich $0,5 \text{ fs}^2$.

eine Unsicherheit in der Bestimmung der Phasenkrümmung von 1 fs^2 einem Fehler $< 0,1 \text{ fs}$ in der Messung der Impulsdauer. Eine Abweichung von lediglich 3 fs^2 führt hier jedoch bereits zu einem Fehler von $0,5 \text{ fs}$.

Abbildung 3.9 zeigt einen der kürzesten Impulse, die mit dem vorgestellten, modifizierten SPIDER aufgenommen wurden. Das gemessene SPIDER-Interferogramm ist in Abbildung 3.9 a) zu sehen, während in 3.9 b) spektrale Intensität und Phase des Impulses dargestellt sind. Das über eine Bandbreite von 240 THz ausgestreckte Spektrum unterstützt einen Impuls mit einer Fourier-limitierten Dauer von $4,2 \text{ fs}$. Abgesehen von einem zentralen Übergangsbereich, der eine Phasenänderung von 2π aufzeigt, ist die spektrale Phase zwischen 300 THz und 520 THz nahezu konstant. Die spektralen Phasenoszillationen mit einer Amplitude von ca 1 rad sind charakteristische Artefakte der Dispersionskompensation mittels breitbandiger gechirpter Spiegel (siehe Kapitel 4). Sie liegen reproduzierbar vor und erzeugen kleine Satellitenimpulse in der Messung. Selbst ein experimenteller Fehler in der Höhe dieser Oszillationsamplitude würde vorwiegend zu einem Jitter in der Substruktur der Satellitenimpulse führen. Die Dauer des rekonstruierten Hauptimpulses hängt hingegen in erster Linie von der Phasenkrümmung ab, die sich über den gesamten Spektralbereich erstreckt. Wie gezeigt wurde, kann eine sol-

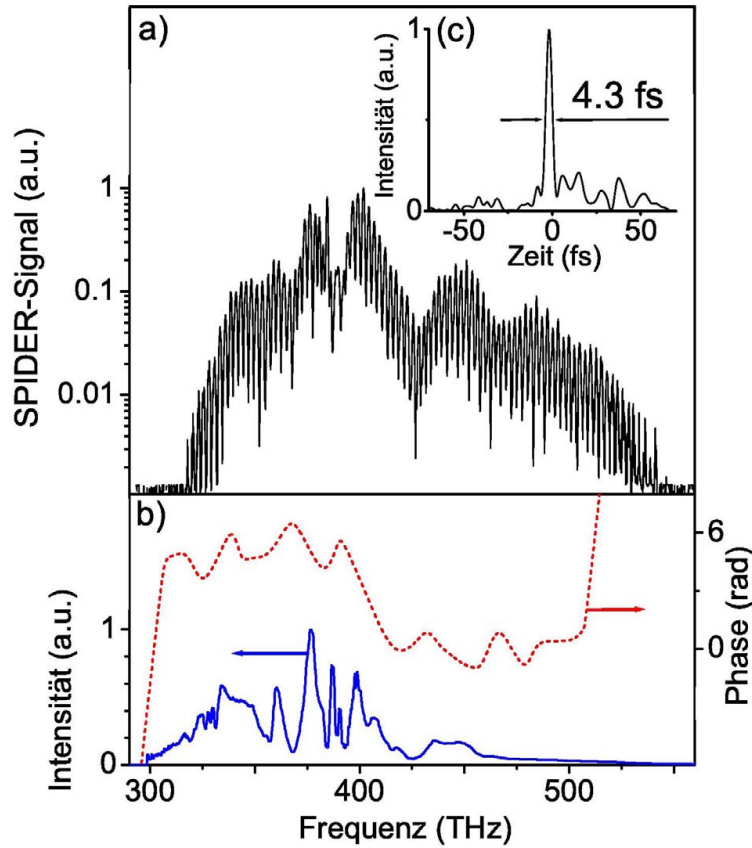


Abbildung 3.9: Demonstrationsmessung eines ultrakurzen optischen Impulses. a) Gemessenes SPIDER-Interferogramm, verschoben um -331 THz zur Anpassung des Spektralbereiches an das fundamentale Impulsspektrum. b) Spektrale Phase und intensitätskalibriertes Spektrum des in c) abgebildeten zeitlichen Impulsprofils.

Die „globale“ Phasenkrümmung mit Hilfe der SPIDER-Technik auf $< 3 \text{ fs}^2$ genau bestimmt werden, was eine Abschätzung des absoluten Fehlers in der Bestimmung der Impulsdauer von 4,3 fs auf $\pm 0,3 \text{ fs}$ erlaubt. Damit spricht die rekonstruierte Impulsdauer und ein Satellitenimpulsanteil von unter 20% des Intensitätsmaximums für eine gute Kompression des Hohlaserkontinuums.

3.2 Das räumlich kodierende SPIDER-Verfahren

Wie aus dem vorherigen Abschnitt deutlich wird, benötigt das klassische SPIDER ein hochauflösendes Spektrometer, um vollständig durchmodulierte Interferogramme angesichts bereits stark modulierter Spektren möglichst störungsfrei zu gewinnen. Handelt es sich darüberhinaus noch um einen spektral extrem breitbandigen Impuls, stößt diese Methode an eine natürliche Grenze, wenn man an einer Einzelschuss-Messung interessiert ist. Die kürzlich eingeführte Methode des „Spatially Encoded Arrangement for SPIDER“ (SEA-SPIDER, [103]) weist unter Anlehnung an das ZAP-SPIDER Konzept [102] einen Ausweg aus diesem Dilemma. Hinzu kommen eine ganze Reihe weiterer Vorteile dieser Methode, welche die bisherigen potentiellen Schwächen des SPIDER-Verfahrens ausräumen:

1. „Zero Additional Phase“ (ZAP)-Messung: Der Testimpuls wird ohne Einführung zusätzlicher Dispersion (außer der Luftstrecke) durch den Charakterisierungsaufbau vermessen.
2. Das SEA-SPIDER Interferogramm ist intuitiv, d.h. ein Chirp und dessen Vorzeichen kann direkt qualitativ abgelesen werden, ohne dass eine Auswertung der Messung nötig ist.
3. Das SEA-SPIDER Interferogramm kann selbst bei breitbandigen Impulsen mit einem kleinen Spektrometer niedriger Auflösung aufgenommen werden. Wie beim FROG-Verfahren reicht eine spektrale Auflösung nahe dem „Whittaker-Shannon-Abtast-Limit“ aus, um einen Impuls bestimmter zeitlicher Ausdehnung korrekt zu rekonstruieren.
4. Die im SEA-SPIDER Interferogramm zusätzlich enthaltene räumliche Koordinate ermöglicht die Untersuchung der Impulsstruktur über den Querschnitt des Strahls. Raum-Zeit-Kopplungseffekte könnten damit festgestellt werden.

Ein Schema des SEA-SPIDER Prinzips ist in Abbildung 3.10 zu sehen. Im Gegensatz zum klassischen SPIDER wird der Testimpuls nicht dupliziert, sondern mit zwei zeitlich um τ versetzten, stark gechirpten Impulsen aufkonvertiert. Bei diesem Prozess kommt es wieder zur Summenfrequenzerzeugung zwischen dem Testimpuls und zwei unterschiedlichen, praktisch monochromatischen Anteilen der gechirpten Impulse. Wegen des fehlenden zeitlichen Versatzes der beiden entstehenden frequenzverschobenen Signalimpulse tritt keine Signalmodulation entlang der spektralen Achse auf. Mittels eines nicht-kollinearen Strahlengangs führt man nun eine geringe räumliche Verkipfung

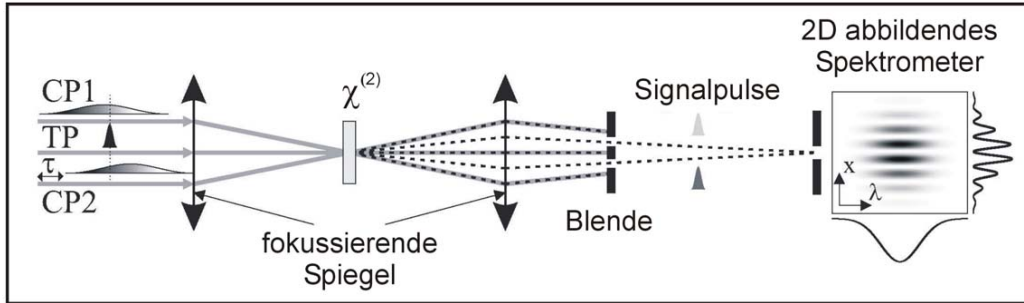


Abbildung 3.10: Schema eines SEA-SPIDERS: Anstelle zweier Repliken des Testimpulses (TP) wird der stark gechirpte Impuls zur Aufkonvertierung (CP) dupliziert. Anschließend wird das Impulspaar zeitlich um τ getrennt. Die Verkipfung der Wellenfronten der beiden frequenzverscherten Signalimpulse führt zur Interferenz entlang der räumlichen Achse x eines 2D-abbildenden Spektrometers.

der Wellenfronten beider Signalimpulse ein. Im Überlappungsbereich beider Strahlen verursacht dies eine räumliche Interferenz beider Strahlen. Dieser Bereich des Strahlüberlapps wird auf den Eingangsspalt eines 2D abbildenden Spektrometers projiziert.

Optimierung für sub-10 fs Impulse

Abbildung 3.11 zeigt einen, für Impulsdauern unter 10 fs optimierten SEA-SPIDER Aufbau, mit dem bereits erfolgreich Impulsdauern unter 7 fs gemessen wurden [110]. Der zu messende Testimpuls (TP) wird über Reflexion an einem Inconel-beschichteten Strahlteiler dispersionsfrei aus dem Eingangsimpuls gewonnen. Der transmittierte Impuls wird zunächst stark gechirpt ($GDD = 15800 \text{ fs}^2$), zur Typ-II Phasen Anpassung in seiner Polarisati on gedreht (achromatische $\lambda/2$ -Wellenplatte) und anschließend über einen breitbandigen dielektrischen Strahlteiler dupliziert (CP1 und CP2). Ein Verschiebetisch im Strahlengang eines der beiden gechirpten Impulse ermöglicht die freie Einstellung der gewünschten spektralen Scherung $\Delta\omega$ über die Wahl der Verzögerung τ zwischen CP1 und CP2. Eine interferometrische Stabilität ist aufgrund der Aufnahme eines räumlichen Interferogramms nicht erforderlich. Die drei parallel propagierenden Strahlen werden über einen konkaven Spiegel der Brennweite $f = 10 \text{ cm}$ in den $50 \mu\text{m}$ dicken Typ-II BBO-Kristall fokussiert und räumlich zum Überlapp gebracht. Schließlich projiziert ein zweiter konkaver Spiegel ($f = 10 \text{ cm}$) den Bereich des Strahlenüberlapps auf den Eingangsspalt eines zweidimensional abbildenden Spektrometers. Räumliche Isolierung der beiden aufkonvertierten Signalstrahlen und eine Drehung

der Einfallsebene parallel zum Eingangsspalt des Spektrometers sind zur korrekten Aufnahme nötig.

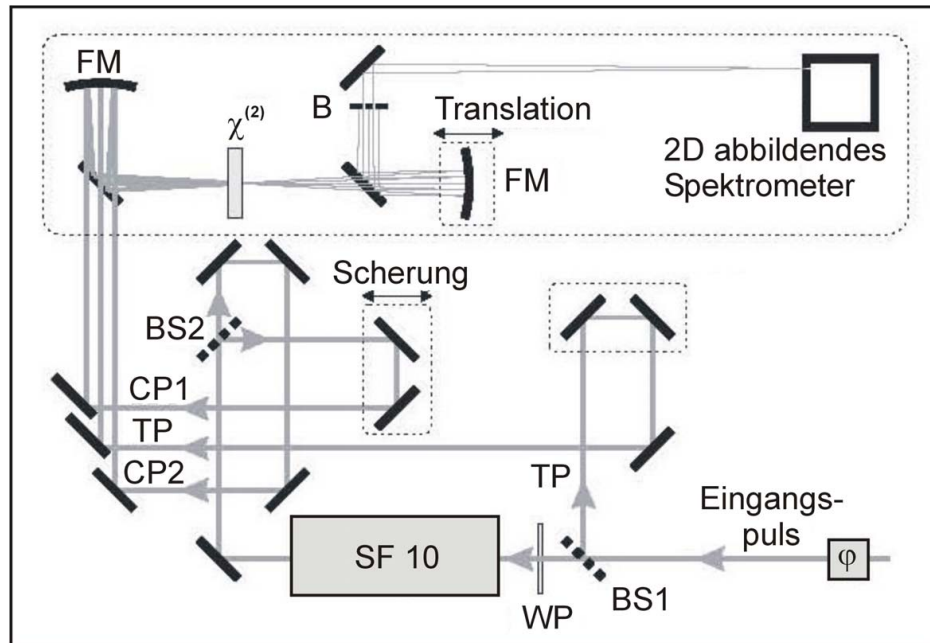


Abbildung 3.11: SEA-SPIDER-Aufbau, optimiert für die Charakterisierung optischer Impulse im Impulsdauerbereich weniger optischer Zyklen (BS1: Inconelbeschichteter Strahlteiler, BS2: breitbandiger dielektrischer Strahlteiler, WP: $\lambda/2$ -Wellenplatte, SF10: 10 cm langer SF10-Glasblock, TP: Test- bzw. Eingangsimpuls, CP: gecirpter Impuls, FM: fokussierender Spiegel mit $f = 10$ cm, B: Blende, φ : zusätzliche Materialdispersion, $\chi^{(2)}$: nichtlinearer Typ-II Kristall).

Eine Demonstration des Verfahrens

Für einen ersten Test wurden Impulse eines Ti:Saphir Laseroszillators (Femtolasers Rainbow) mit einer Impulsenergie $< 3,8$ nJ, deren Spektrum den Bereich von 660 nm bis 970 nm abdeckt, ausgemessen. Die Detektion wurde mit einem 2D abbildenden Spektrometer (Acton SP-150, Gitter: 150 Linien/mm) und einer 2D CCD-Kamera [Pulnix 1040, 1000×1000 ($9\mu\text{m}$)²-Pixel] vorgenommen.

Abbildung 3.12 zeigt vier verschiedene SEA-SPIDER Interferogramme, von denen Abbildung a) eine Referenzmessung zur Kalibration der Apparatur darstellt. Die restlichen Spuren sind Messungen mit verschiedenen Beträgen hinzugefügter Dispersion. Ein solches SEA-SPIDER Interferogramm kann

durch die Gleichung

$$I_{\text{SEA}}(\omega, x) = |E(\omega, x)|^2 + |E(\omega - \Delta\omega, x)|^2 + 2 |E(\omega, x)| |E(\omega - \Delta\omega, x)| \times \cos [\varphi(\omega, x) - \varphi(\omega - \Delta\omega, x) + \Delta k x] \quad (3.12)$$

beschrieben werden, in der x für die räumliche Position entlang des Strahlquerschnitts, Δk für die Differenz der Wellenvektoren beider Signalstrahlen und $\Delta\omega$ für die spektrale Verscherung beider Signalimpulse gemäß Gleichung (2.66) steht. Setzt man den Abstand τ beider gechirpter Impulse auf Null, existiert auch keine spektrale Scherung mehr zwischen den Signalimpulsen ($\Delta\omega = 0$). In Gleichung (3.12) reduziert sich dann der Term im Kosinus auf den Ausdruck $\Delta k x$. Als eine lineare Funktion von x , die im Rahmen der CCD-Auflösung wellenlängenunabhängig ist, führt dies zu glatten, parallel zur Frequenzachse ausgerichteten Interferenzstreifen. Eine solche Messung ist in Abbildung 3.12 a) zu sehen. Analog zur Referenzmessung des klassischen SPIDERS zur Bestimmung des linearen Terms $\omega\tau$ ist auch beim SEA-SPIDER eine solche Messung zur Feststellung des linearen Anteils $\Delta k x$ nötig, da dieser von der ermittelten Interferogrammpphase abgezogen werden muss.

Abbildung 3.12 b) zeigt das SEA-SPIDER Interferogramm des Rainbow-Impulses nach Einstellung einer spektralen Scherung von $\Delta\omega/2\pi = 4,3$ THz. Die Interferenzstreifen sind auch hier noch parallel zur Frequenzachse ausgerichtet, was das Fehlen von signifikanter Gruppenlaufzeitdispersion anzeigt. Die geringe Welligkeit der Interferenzstreifen zeugt von höheren Dispersionsordnungen. Eine Demonstration des intuitiv erfassbaren Einflusses eines Chirps auf die SEA-SPIDER Spur ist in den Abbildungen 3.12 c) und d) zu sehen. Für die Messung eines stark positiv gechirpten Impulses [Abbildung 3.12 c)] wurde ein 1 cm dicker Quarzglasblock ($\text{GDD} \approx +350 \text{ fs}^2$) in den Strahlengang des Eingangsimpulses eingeführt. Die positive Steigung der Interferenzstreifen [gestrichelte Linie in Abbildung 3.12 c)] verrät sofort die lineare spektrale Abhängigkeit der Gruppenverzögerung. Auch die Rekonstruktion der spektralen Impulsphase, dargestellt in Abbildung 3.13, stimmt mit dem berechneten Phasenverhalten gut überein. Hier beträgt die RMS-Abweichung der gemessenen Impulsphase über den gesamten Spektralbereich zwischen 670 nm und 970 nm lediglich 0,5 rad, was einer typischen Genauigkeit des SPIDER-Verfahrens entspricht.

Über zwei Reflexionen an gechirpten Spiegeln wurde der Eingangsimpuls einer Dispersion von $\text{GDD} \approx -120 \text{ fs}^2$ ausgesetzt. Die Auswirkung auf das SEA-SPIDER Interferogramm ist in Abbildung 3.12 d) zu erkennen. Neben der

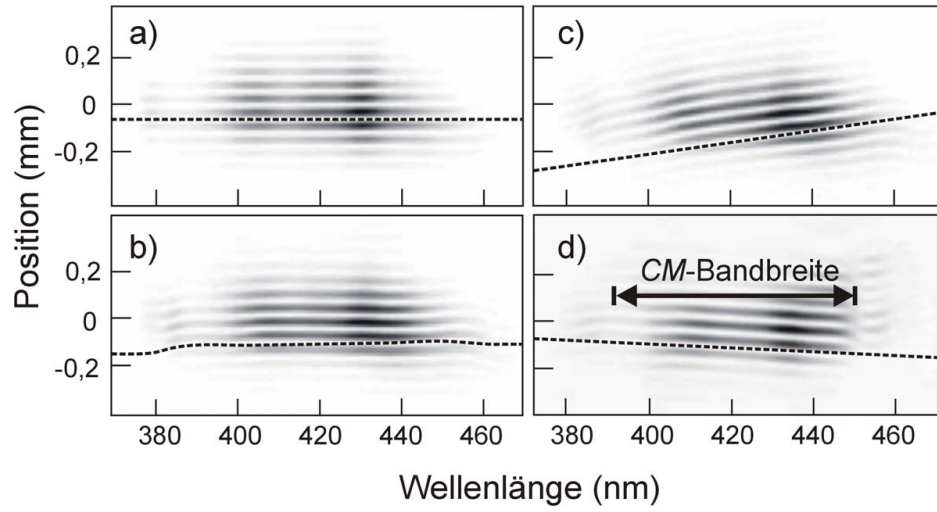


Abbildung 3.12: SEA-SPIDER Interferogramme eines Ti:Saphir-Lasersoszillators (Femtolasers Rainbow). a) Kalibrationsmessung (keine spektrale Scherung); b) SEA-SPIDER Messung des Rainbow-Impulses; c) Interferogramm eines positiv gechirpten Impulses ($GDD \approx +350 \text{ fs}^2$); d) Interferogramm eines negativ gechirpten Impulses ($GDD \approx -120 \text{ fs}^2$). Die gestrichelten Linien verdeutlichen die direkte, qualitative Ablesbarkeit der Gruppenverzögerung (CM-Bandbreite: Von den gechirpten Spiegeln unterstützter Spektralbereich).

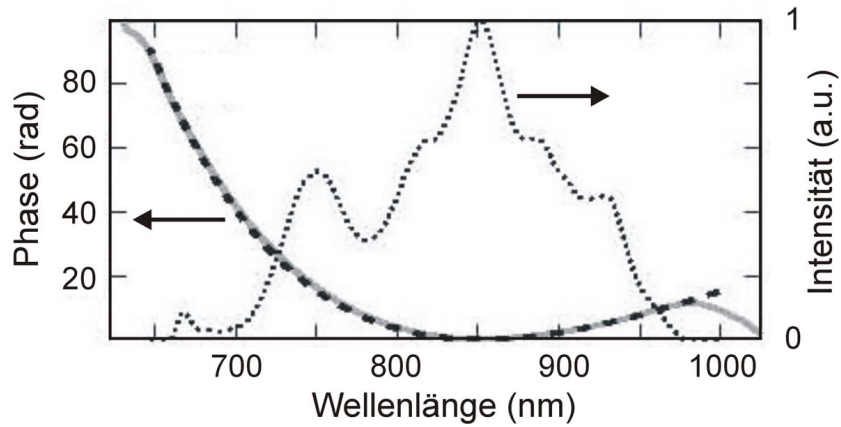


Abbildung 3.13: Impulsrekonstruktion im Spektralraum aus dem Datensatz der Abbildung 3.12 a) und c). Die gemessene spektrale Impulsphase (durchgezogene, graue Linie) stimmt mit dem berechneten Phasenverhalten nach Durchlaufen von 1 cm Quarzglas (gestrichelte Linie) überein. Das Intensitätsspektrum des Lasers ist punktiert eingezeichnet.

erwarteten negativen Steigung der Interferenzstreifen, die dem Betrage nach

geringer als in Abbildung 3.12 c) ausfällt, ist auch die spektrale Bandbreite der gechirpten Spiegel ablesbar. Das Laserspektrum übertrifft die, durch die gechirpten Spiegel unterstützte Bandbreite und deckt damit Phasendiskontinuitäten am spektralen Rande der Spiegel auf.

Zur Phasenrekonstruktion

Die Auswertung einer SEA-SPIDER Messung erfordert im Vergleich zum klassischen SPIDER etwas mehr Zeit, da zur Filterung des durch die interferometrische Modulation im Fourierraum erzeugten Seitenbandes eine 2D-Fouriertransformation nötig wird. Das Prinzip der Phasenrekonstruktion (Abschnitt 2.4.3) bleibt jedoch erhalten. In Analogie zum SPIDER benötigt man neben der SEA-SPIDER Messung, welche die Interferogrammphase $\varphi_{\text{SEA}}(\omega, x) = \varphi(\omega, x) - \varphi(\omega - \Delta\omega, x) + \Delta k x$ liefert, eine Referenzmessung bei der Scherung $\Delta\omega = 0$ mit der Interferogrammphase $\varphi_{\text{Ref}}(\omega, x) = \Delta k x$. Differenzbildung $\varphi_{\text{SEA}}(\omega, x) - \varphi_{\text{Ref}}(\omega, x)$ und Verkettung der Phasenänderung entlang der spektralen Achse liefert einen Satz spektraler Impulsphasen $\varphi(\omega, x)$. Für jeden aufgelösten Punkt x entlang einer Linie quer durch das Strahlprofil ist damit die spektrale Phase $\varphi(\omega)$ in nur einem Belichtungszyklus der Spektrometerkamera bestimmt.

3.3 Das interferometrische FROG

Das „Second Harmonic Generation FROG“ (SHG-FROG) ist wohl die verbreitetste Impulscharakterisierungsmethode. Allerdings treten auch hier bei Impulsdauern unter 10 fs Fehlerquellen auf, deren Vermeidung besondere Sorgfalt erfordert.

Im Abschnitt 2.4.2 wurde bereits das Problem einer begrenzten zeitlichen Auflösung, verursacht durch einen endlichen Kreuzungswinkel der Strahlen im nicht kollinearen FROG-Aufbau, diskutiert. Zur Vermeidung des resultierenden Fehlers im Impulsprofil kamen in der Vergangenheit verschiedenste Methoden zum Einsatz. So wurden beispielsweise Algorithmen zur Fehlerkorrektur vorgeschlagen [83], aber auch das Ausblenden der Außenbereiche des SHG-Strahlprofils kann den Fehler der geometrischen Verschmierung reduzieren [59]. Ein kollinear FROG-Aufbau ist eine weitere Möglichkeit der Umgehung des Problems. Motiviert wurde ein solcher Aufbau durch die Impulsmessung im Fokus eines Mikroskopobjektives z.B. für die Zwei-Photonen-Mikroskopie [117, 118, 119]. Kreuzpolarisierte Strahlen und die Verwendung eines Typ II phasenangepassten SHG-Kristalls ermöglichen eine kollineare SHG-FROG-Messung ohne Interferenzeffekte [117]. Das gleiche Prinzip wurde auch bei der Vermessung von Impulsdauern unter 10 fs angewandt, wobei besonderer Wert auf einen dispersionsarmen, spektral breitbandigen Aufbau gelegt wurde [120, 115]. Allerdings ist dieses Verfahren aufgrund des Überlapps fundamentaler und frequenzverdoppelter Anteile auf spektrale Breiten von maximal einer Oktave begrenzt. Außerdem führen Gruppenlaufzeitunterschiede der beiden Impulse im doppelbrechenden Kristall zu einer, der geometrischen Verschmierung ähnlichen eingeschränkten Zeitauflösung [121].

Als Alternative zur Lösung des Problems der geometrischen Verschmierung wird in den folgenden Abschnitten das Verfahren des interferometrischen FROG (IFROG) vorgestellt, das auf einer kollinearen Typ-I phasenangepassten SHG-FROG-Geometrie beruht [122, 111, 112]. Dieses Verfahren erfordert die Messung einer spektral aufgelösten interferometrischen Autokorrelation eines Impulses (IAC, siehe Abschnitt 2.4.1), was nur durch die Aufnahme umfangreicher Datensätze möglich ist. Aus diesem Grund wurden interferometrische FROG-Geometrien bisher vermieden. So enthält eine IFROG-Spur Intensitätsmodulationen mit Periodizitäten, die der Interferenz fundamentaler Frequenzkomponenten als auch der zweiten Harmonischen entsprechen. Damit ist das Nyquist-Limit für die Abtastrate einer solchen Spur auf ein Viertel eines optischen Zyklus festgelegt. Speziell im Falle von Ti:Saphir-Lasersimpulsen mit 800 nm Zentralwellenlänge resultiert daraus eine maxi-

male zeitliche Schrittweite der IFROG-Messung von 0,5 fs. Die Aufnahme eines Zeitbereiches von 100 fs erfordert dementsprechend eine Messung von über 200 Spektren. Auch müssen diese Spektren schnell genug aufgenommen werden, um Verwaschungen der Interferenzstruktur durch die Interferometerdrift zu verhindern.

In den folgenden Abschnitten wird kurz auf die experimentelle Realisierung einer IFROG-Messung eingegangen. Ausführlicher wird die Analyse und Interpretation einer IFROG-Spur behandelt und das Herausfiltern einer neuen Art von FROG-Spur vorgestellt. Diese FROG-Spur unterscheidet sich prinzipiell von denen in Abschnitt 2.4.2 beschriebenen FROG-Varianten, da sie z.B. neben positiven Bereichen auch negative Werte, ähnlich der Wigner-Funktion, aufweisen kann (siehe Anhang A). Analog zur IAC enthält diese neue FROG-Spur auch Information über den Chirp des Impulses, was eine Modifikation der Struktur des Rekonstruktionsalgorithmus erfordert. Interessanterweise ist in einer IFROG-Spur genug Information kodiert, um das Impulsfeld auf zwei vollständig unabhängigen Wegen zu rekonstruieren, was zusätzliche Kontrollmöglichkeit bietet. Die vorgestellten Strategien werden an verschiedenen gemessenen Beispielen demonstriert.

Als ein neuer Ansatz zur analytischen Gewinnung der spektralen Phase aus einer IFROG-Messung wird der MEFISTO-Algorithmus in Anhang D vorgestellt und diskutiert [113].

3.3.1 Die Struktur der IFROG-Spur

Eine der Schwierigkeiten bei der Interpretation einer IFROG-Messung liegt in der riesigen Datenmenge. Die Reduktion der Daten durch simple Interpolation auf ein gröberes $N \times N$ -Gitter ist hier nicht ohne weiteres möglich. Ein weiteres Problem entsteht durch die komplexe, hoch modulierte Struktur der Spur. Jeder Versuch der Rekonstruktion einer Impulsform direkt aus einer IFROG-Messung ist vergebens, sobald auch nur eine geringe, experimentell verursachte Störung der Modulationsstruktur vorliegt. Da der Abstand der Interferenzmaxima auch über die Wellenlängenkalibration des Spektrometers bestimmt werden kann, ist diese Information redundant in der IFROG-Spur enthalten. Sie kann daher zur gegenseitigen Kontrolle von Wellenlängen- und zeitlicher Kalibration der Verzögerungsstrecke herangezogen werden. Es ist jedoch ratsam, das Herausfiltern dieser modulatorischen Struktur einer Impulsrekonstruktion voranzustellen. Aus diesem Grund soll hier näher auf die Isolierung der Amplituden der einzelnen Fourier-Komponenten einer IFROG-Spur eingegangen werden.

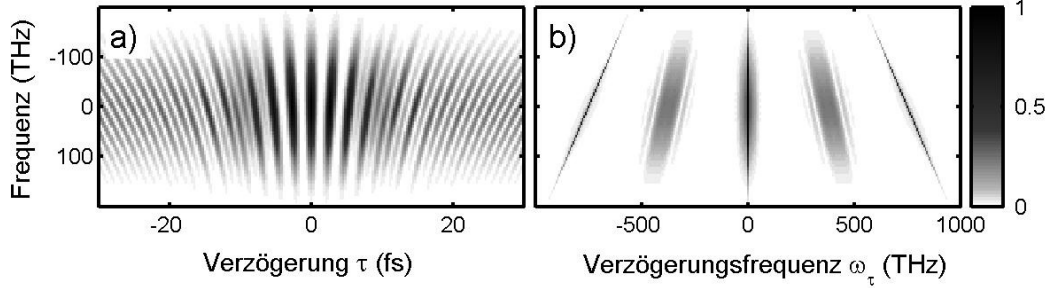


Abbildung 3.14: Simulierte interferometrische FROG-Spur eines auf 4 fs Fourierlimitierten Gauß-Impulses, nachdem er durch $GDD = 15 \text{ fs}^2$ dispersiv gestreckt wurde. Die Trägerfrequenz von 750 THz wurde bereits von der Ordinate abgezogen. a) Berechnete IFROG-Spur. b) Entlang der Verzögerungsachse fouriertransformierte IFROG-Spur. In dieser Darstellung sind die fundamentalen Seitenbänder um eine Verzögerungsfrequenz von $\pm 375 \text{ THz}$ zentriert, wohingegen die SHG-Seitenbänder eine scharfe Linie bei $\pm 750 \text{ THz}$ ausbilden.

Löst man das Signal der zweiten Harmonischen von zwei identischen Impulsen $\tilde{E}(t)$ im zeitlichen Abstand τ spektral auf, so erhält man den Ausdruck [122]:

$$I_{\text{IFROG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \left(\tilde{E}(t) + \tilde{E}(t - \tau) \right)^2 \exp(-i\omega t) dt \right|^2. \quad (3.13)$$

Über Gleichung (2.4) für das elektrische Feld und der Einführung einer modifizierten Frequenzachse $\Delta\omega = \omega - 2\omega_0$ gelingt eine Zerlegung der Gleichung (3.13) in vier Terme [122, 111]:

$$\begin{aligned} I_{\text{IFROG}}(\Delta\omega, \tau) = & 2|\tilde{E}_{\text{SH}}(\Delta\omega)|^2 + 4|\tilde{E}_{\text{FROG}}(\Delta\omega, \tau)|^2 \\ & + 8 \cos \left[\left(\omega_0 + \frac{\Delta\omega}{2} \right) \tau \right] \times \\ & \text{Re} \left[\tilde{E}_{\text{FROG}}(\Delta\omega, \tau) \tilde{E}_{\text{SH}}^*(\Delta\omega) \exp \left(i \frac{\Delta\omega}{2} \tau \right) \right] \\ & + 2 \cos [(2\omega_0 + \Delta\omega) \tau] |\tilde{E}_{\text{SH}}(\Delta\omega)|^2, \end{aligned} \quad (3.14)$$

wobei das klassische SHG-FROG-Feld der zwei Impulse über Gleichung (2.48) als

$$\tilde{E}_{\text{FROG}}(\Delta\omega, \tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\mathcal{E}}(t) \tilde{\mathcal{E}}(t - \tau) \exp(-i\Delta\omega t) dt \quad (3.15)$$

definiert ist, wenn $I_{FROG}^{SHG}(\Delta\omega, \tau) = |\tilde{E}_{FROG}(\Delta\omega, \tau)|^2$ gilt. Für das „Second Harmonic“ (SH) Feld eines einzelnen Impulses gilt dann:

$$\begin{aligned}\tilde{E}_{SH}(\Delta\omega) &= \tilde{E}_{FROG}(\Delta\omega, \tau = 0) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\mathcal{E}}^2(t) \exp(-i\Delta\omega t) dt.\end{aligned}\quad (3.16)$$

Abbildung 3.14 zeigt die Struktur einer IFROG-Spur am Beispiel eines gechirpten Gauß-Impulses. Trotz der relativ einfachen Impulsstruktur entsteht im Zeit-Frequenz-Raum der Abbildung 3.14 a) ein kompliziertes Interferenzstreifenmuster. Fouriertransformation entlang der τ -Achse trennt ein Basisband und zwei symmetrische Seitenbandpaare voneinander. Ein Vergleich der Abbildung 3.14 b) mit Gleichung (3.14) erlaubt die Identifikation des Basisbandes mit den ersten beiden Termen der Gleichung, die keine Modulation aufweisen. Dieser DC-Anteil, der eine untergrundbehaftete klassische SHG-FROG-Spur $|\tilde{E}_{FROG}(\Delta\omega, \tau)|^2$ enthält, wurde bereits in Referenz [122] zur iterativen Impulsrekonstruktion mittels vorhandener Standardalgorithmen (siehe Abschnitt 2.4.2) genutzt. Der ebenfalls enthaltene Untergrundterm $2|\tilde{E}_{SH}(\Delta\omega)|^2$ besteht aus dem τ -unabhängigen SHG-Spektrum des gemessenen Impulses und kann bei großem Impulsabstand τ isoliert und abgezogen werden. Im Vergleich zum klassischen SHG-FROG erhält man dadurch jedoch eine stärker verrauschte SHG-FROG-Spur über einen zusätzlich reduzierten Dynamikbereich.

Der Kosinus im dritte Term der Gleichung (3.14) sorgt für eine Signalmodulation fundamentaler Periodizität mit Frequenzen um $\omega_0 + \Delta\omega/2$. Im Fourier-transformierten Raum der Abbildung 3.14 b) entstehen daraus die Seitenbänder bei $\pm\omega_0$. Interessanterweise hängt dieser interferometrische Anteil linear vom FROG-Feld \tilde{E}_{FROG} aber auch von der relativen Phase zwischen FROG- und SH-Feld \tilde{E}_{SH} ab. Im weiteren Verlauf wird diese Komponente der IFROG-Spur als fundamental modulierter (FM) Anteil bzw. als FM-FROG-Spur bezeichnet.

$$\begin{aligned}I_{FMFROG}(\Delta\omega, \tau) &= \text{Re} \left[\tilde{E}_{FROG}(\Delta\omega, \tau) \tilde{E}_{SH}^*(\Delta\omega) \exp\left(i\frac{\Delta\omega}{2}\tau\right) \right]; \\ &= |\tilde{E}_{FROG}(\Delta\omega, \tau)| |\tilde{E}_{FROG}(\Delta\omega, \tau = 0)| \times \\ &\quad \cos\left(\varphi_{FROG}(\Delta\omega, \tau) - \varphi_{FROG}(\Delta\omega, \tau = 0) + \frac{\Delta\omega}{2}\tau\right).\end{aligned}\quad (3.17)$$

Im Gegensatz zur ebenfalls in Gleichung (3.14) enthaltenen SHG-FROG-Spur ist die FM-FROG-Spur I_{FMFROG} untergrundfrei. Als Realteil eines Produktes

komplexer Größen kann die FM-FROG-Spur auch negative Werte annehmen. Des Weiteren zeigt sich in Gleichung (3.17), dass die Phase des Impulses direkt in dieser neuen Art von FROG-Spur kodiert ist, wodurch sie sich von anderen FROG-Varianten deutlich unterscheidet.

Die Amplitude im vierten Term der Gleichung (3.14) erweist sich schließlich wieder als SHG-Spektrum des Impulses. Dieses ist mit der Periodizität der zweiten Harmonischen moduliert, was in der Abbildung 3.14 b) zu den Seitenbändern bei $\pm 2\omega_0$ führt. Deutlich zu erkennen ist die schmale, nadelscharfe Ausprägung dieser Seitenbänder bezüglich der Achse der Verzögerungsfrequenz („Delay-Frequency“), was durch die Unabhängigkeit des SH-Feldes von τ verursacht wird. Eine alternative Beschreibung dieser Seitenbänder gelingt über das Bild der spektralen Interferometrie [104] zwischen zwei identischen, unabhängig voneinander frequenzverdoppelten Impulsen, die mit zeitlichem Abstand τ kollinear propagieren. Obwohl dieser Term auf den ersten Blick nutzlos für eine Impulsrekonstruktion erscheint, kann er als intrinsische Kalibration des Impulsabstandes τ Verwendung finden und erspart somit eine separate τ -Messung z.B. durch einen mitlaufenden He-Ne-Laser. Bei einer experimentellen Spur erlaubt die Breite des SHG-Seitenbandes eine Abschätzung des Fehlers in der τ -Bestimmung. Wie später gezeigt wird, kann man diese Information ebenfalls zur Korrektur der Verzögerungsachse einer FM-FROG-Spur verwenden.

3.3.2 Die Struktur der FM-FROG-Spur

Im weiteren Verlauf werden einige typische Beispiele von FM-FROG-Spuren mit der jeweils zugehörigen Wigner-Funktion und dem klassischen SHG-FROG verglichen. So zeigt die Abbildung 3.15 eine solche Gegenüberstellung am Beispiel eines Gauß-Impulses, der verschiedenen Typen von Dispersion im Bereich reiner 2ter bis zur 4ten Ordnung unterworfen wurde. Vollständigkeitshalber sind ebenfalls die unstrukturierten Spuren für den Fall des ungechirpten Impulses abgebildet.

Eine nähere Betrachtung zeigt, dass die FM-FROG-Spur einem Zwischenprodukt von Wigner-Funktion und SHG-FROG-Spur ähnelt. So wird man bei den ausgeprägten negativen Bereichen und modulierten Ausläufern der FM-FROG-Spur an die Wigner-Repräsentation des Impulses erinnert, wohingegen die hohe Symmetrie der Spur ein deutliches SHG-FROG-Merkmal ist. Berücksichtigt man die Tatsache, dass die Abbildung 3.15 fast drei Größenordnungen umfasst, zeigt sich, dass Unterschiede im Chirp eines Impulses in der SHG-FROG-Spur nur im Bereich geringer Intensitäten sichtbar

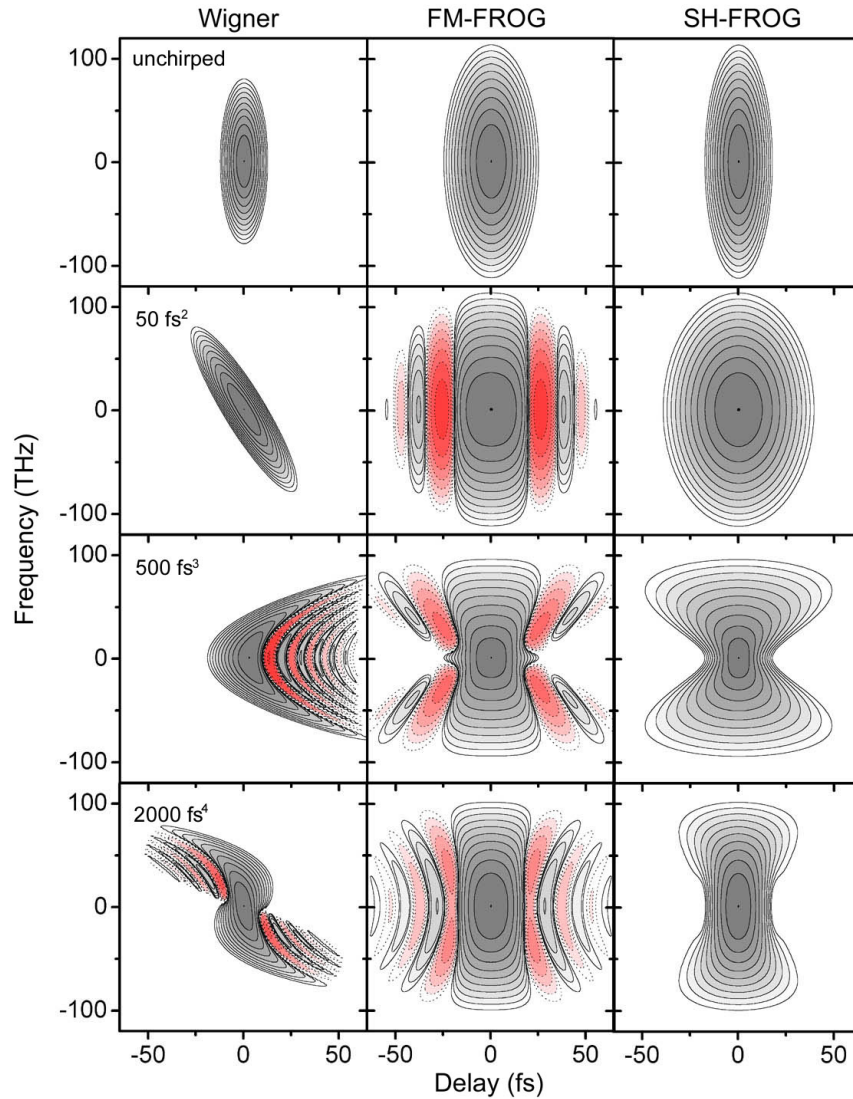


Abbildung 3.15: Vergleich von Wigner-Funktion (linke Spalte), FM-FROG (mittlere Spalte) und klassischem SHG-FROG (rechte Spalte) für verschiedene Typen von Dispersion. Die oberste Zeile zeigt die entsprechenden Spuren für den Fall eines ungechirpten 8 fs Gauß-Impulses, während die folgenden drei Zeilen den gleichen Impuls nach dispersivem Einfluss zeigen. Die entsprechenden Dispersionstypen reichen von 2ter bis 4ter Ordnung und sind in der linken Spalte eingetragen. Positive Bereiche einer Spur sind als durchgehende Konturlinien, negative Bereiche punktiert eingezeichnet. Die Konturen folgen einer logarithmischen Skalierung, beginnend beim Maximalwert bis herunter auf 0,2% dieses Wertes.

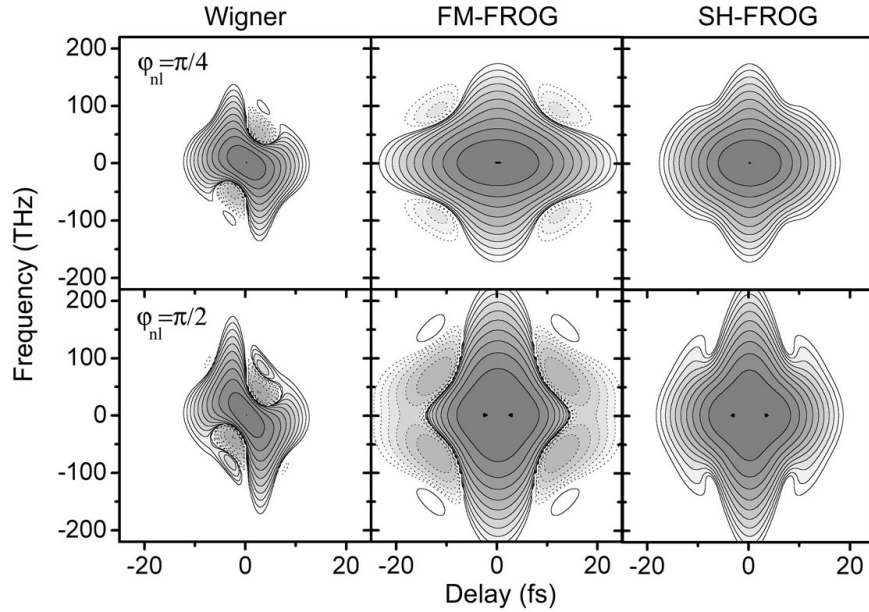


Abbildung 3.16: Vergleich verschiedener Verteilungen im Zeit-Frequenz-Raum für den Fall verschiedener starker Selbstphasenmodulation. Der Grad der Modulation ist in der linken Spalte eingetragen. Die Parameter der Darstellung sind die gleichen wie die der Abbildung 3.15.

werden. Im gut messbaren Bereich hoher Intensität ist eine SHG-FROG-Spur in weiten Teilen von elliptischer Form. Im Gegensatz dazu reagiert das FM-FROG unmittelbar auf das Vorhandensein eines Chirps, indem es eine Modulation entlang der τ -Achse ausbildet. So stellt sich Dispersion zweiter Ordnung in Form eines Modulationsmusters dar, das absolut parallel zur Frequenzachse ausgerichtet ist. Das Beispiel Dispersion dritter Ordnung weist Konturen auf, deren Ausrichtung sich entlang linearer Funktionen der Frequenz orientiert. Im Falle Dispersion vierter Ordnung haben die Konturen einen parabolischen Verlauf. Bei einem einfachen, Gauß-förmigen Impuls erlaubt demnach die bloße visuelle Untersuchung der FM-FROG-Spur eine Feststellung der Art der Dispersion. Ein weiterer wichtiger Punkt besteht in der Tatsache, dass das FM-FROG-Signal im Vergleich zum SHG-FROG entlang der τ -Achse wesentlich langsamer abklingt. Die Ursache hierfür liegt in der linearen Abhängigkeit der FM-FROG-Spur von $|\tilde{E}_{\text{FROG}}(\omega, \tau)|$ [Gleichung (3.17)], wohingegen das SHG-FROG-Signal mit $|\tilde{E}_{\text{FROG}}(\omega, \tau)|^2$ skaliert. Aus diesem Grund eignet sich eine FM-FROG-Messung besonders zur Charakterisierung komplexer Impulse und deren Satellitenimpulsgehalt. Entfernt man die Modulation der FM-FROG-Spur, erhält man eine, der SHG-FROG-Spur

vergleichbare Struktur.

Ein Vergleich mit der Wigner-Spur lässt die zusätzlichen Vorteile der Wigner-Verteilung gegenüber den FROG-Spuren erkennen. So reicht hier bereits die Integration entlang der Frequenzachse zur Rekonstruktion des Impulsprofils. Weder FM-FROG noch SHG-FROG enthalten Information über das Vorzeichen der Dispersion und die Zeitrichtung, Eigenschaften, die in der Wigner-Verteilung ablesbar sind. Trotzdem stellt das FM-FROG einen bedeutenden Schritt in Richtung einer deutlicheren und leichter interpretierbaren Zeit-Frequenz-Verteilung dar. In Abbildung 3.16 ist die Auswirkung von SPM auf die Struktur der verschiedenen Verteilungen dargestellt. Auch in diesem Fall erweist sich das FM-FROG als die empfindlichere FROG-Variante.

3.3.3 Der FM-FROG- Algorithmus zur Impulsrekonstruktion

Leider verhindert die besondere Struktur des FM-FROG-Signals eine direkte Anwendung der bestehenden FROG-Rekonstruktionsalgorithmen. So lässt sich anscheinend kein passendes Signalfeld $\tilde{E}_{sig}(t, \tau)$ analog zu denen der Tabelle 2.2 für diese Art FROG-Spur angeben. Hinzu kommt, dass in den herkömmlichen FROG-Algorithmen die Projektion auf die Messdaten durch ein Ersetzen der Amplitude $|\tilde{E}_{sig}(\omega, \tau)|$ erfolgt (siehe Abschnitt 2.4.2), was im Falle des FM-FROG aufgrund der zusätzlich enthaltenen Phaseninformation so nicht möglich ist. Aus diesen Gründen können die erfolgreichen Strategien der Impulsrekonstruktion bekannter FROG-Spuren nicht auf den Fall des FM-FROG angewandt werden. Vielmehr muss eine allgemeinere Herangehensweise gefunden werden.

Im Folgenden wird nun ein Rekonstruktionsalgorithmus vorgestellt, der auf eine breitere Klasse von Zeit-Frequenz-Verteilungen anwendbar ist. Ein Flussdiagramm dieses Algorithmus ist in Abbildung 3.17 skizziert. Die hier vorgestellte Strategie basiert auf dem in Abschnitt 2.4.2 beschriebenen Algorithmus der generalisierten Projektionen (GPA).

Das Ziel der Strategie besteht darin, den funktionellen Abstand

$$Z_{\text{FM}} = \sum_{l,m=1}^N \left| I_{\text{FMFROG}}^{\text{mess}}(\Delta\omega_m, \tau_l) - I_{\text{FMFROG}}^{(n)}(\Delta\omega_m, \tau_l) \right|^2 \quad (3.18)$$

iterativ zu minimieren. Da uns im Falle des FM-FROG kein Signalfeld vorliegt, werden an dieser Stelle direkt die vollständigen FM-FROG-Spuren

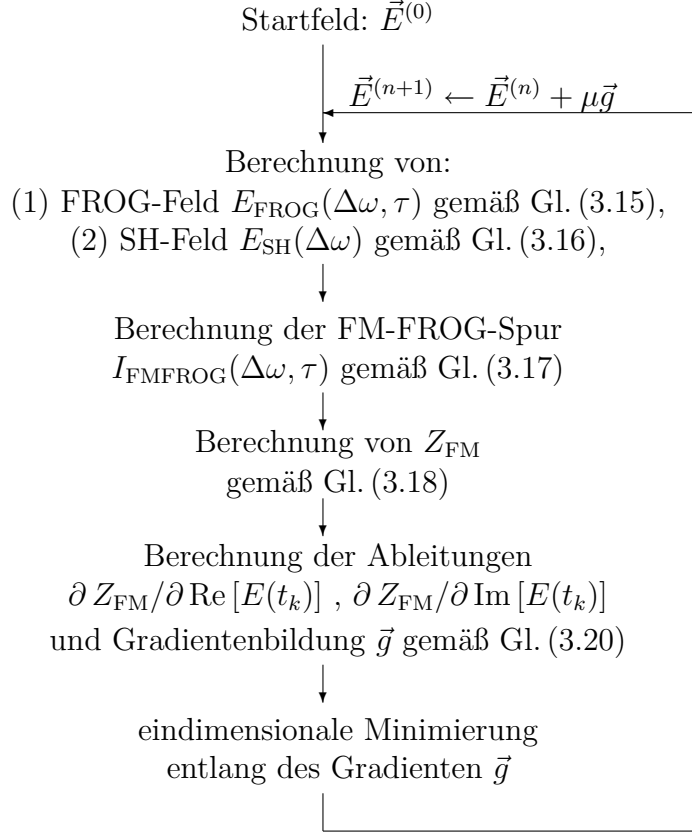


Abbildung 3.17: Iterative Impulsrekonstruktion: Flussdiagramm des Algorithmus, der zur Rekonstruktion des elektrischen Impulsfeldes \vec{E} aus einer FM-FROG-Spur benutzt werden kann.

eingesetzt, wodurch es zu einer unmittelbaren, iterativen Reduzierung des FROG-Fehlers [siehe Gleichung (2.52)] kommt. So steht $I_{\text{FMFROG}}^{\text{mess}}(\omega_m, \tau_l)$ für die gemessenen FM-FROG Daten, während $I_{\text{FMFROG}}^{(n)}(\omega_m, \tau_l)$ die aus dem in n -ter Iteration gewonnenen elektrischen Feld $E^{(n)}(t_k)$ berechnete FM-FROG-Spur darstellt. Ein weiterer Unterschied zum herkömmlichen FROG-GPA ist die Berechnung von Z im ω - τ -Raum, während dies üblicherweise im t - τ -Raum durchgeführt wird. Im Gegenzug muss die Fouriertransformation zur Berechnung der FM-FROG-Spur in Gleichung (3.18) angewendet werden. Interessanterweise funktioniert und konvergiert diese Art des GP-Algorithmus, bei dem beide Projektionen in quasi einem einzigen Schritt durchgeführt werden, da das Prinzip des GPA als eine Fitprozedur eines lokalen Gradienten erhalten bleibt.

Das Startfeld $\vec{E}^{(n+1)}$ der nächsten Iteration wird auch bei dieser modifizierten

GPA-Routine wieder mittels eindimensionaler Minimierung („Line Minimization“ [82]) entlang des Gradienten \vec{g} bestimmt:

$$\vec{E}^{(n+1)} = \vec{E}^{(n)} + \mu \vec{g}. \quad (3.19)$$

Dabei erhält man den Faktor μ , der den Abstand Z_{FM} der nächsten Iteration minimiert. Der Gradient \vec{g} ist über die Ableitungen von Z_{FM} als

$$g_k = \left(\frac{\partial Z_{\text{FM}}}{\partial \text{Re}[E(t_k)]} \right) + i \left(\frac{\partial Z_{\text{FM}}}{\partial \text{Im}[E(t_k)]} \right) \quad (3.20)$$

definiert. Eine detailliertere Beschreibung des Algorithmus sowie eine Notation, die einer Implementierung auf einem Computer eher entgegenkommt, findet man in Anhang C.

3.3.4 Experimenteller Aufbau

Ein Verwaschen der Interferenzstruktur während der Messung ist das Hauptproblem der IFROG-Methode. Dauert die Aufnahme einer IFROG-Spur zu lange, kann die Phasendrift des Interferometers bereits zu groß für eine wirkungsvolle Korrektur der Spur über das enthaltene SHG-Interferenzsignal sein. Die aktive Stabilisierung des Interferometers wäre eine mögliche Lösung. Eine weitere Möglichkeit besteht in der Verringerung der benötigten Messzeit für eine Spur. Dieser Weg wurde zur Aufnahme der hier gezeigten IFROG-Messungen gewählt. Der gesamte Messaufbau ist in Abbildung 3.18 schematisch dargestellt.

Er besteht aus einem typischen dispersionsbalancierten Michelson-Interferometer [analog zur Abbildung 2.5 b)] mit zwei breitbandigen (440-1040 nm) 50% Strahlteilern der Dicke 1 mm. Je nach Signalintensität dient ein konkaver Spiegel mit einer Brennweite zwischen 10 cm und 30 cm der Strahlfokussierung in einen 10 μm dicken $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO) Kristall. Das entstandene SHG-Signal wird durch einen Farbfilter (BG39) oder einen Polarisator vom fundamentalen Anteil getrennt und in einem 0,5 m Spektrometer (Acton 500i) spektral aufgelöst. Zur synchronisierten Aufnahme der Spektren wird eine schnelle Zeilenkamera (Dalsa CL-C6 2049T) direkt über das TTL-Encoder-Signal eines motorisierten und computergesteuerten Verschiebetisches (Physik Instrumente M126.D) getriggert. Während dieser Verschiebetisch mit konstanter Geschwindigkeit den Messbereich abfährt, nimmt die Kamera die Spektren in $\Delta\tau = 0,225$ fs Schritten auf, was 1/12 Wellenlänge bei 800 nm entspricht. Im Bereich des SHG-Signals bedeutet dies eine Abtastrate mit einem Faktor 3 über dem Nyquist-Limit. Typische Messraten

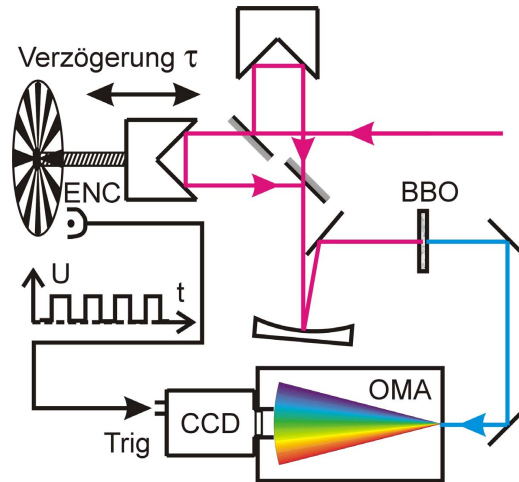


Abbildung 3.18: Experimenteller Aufbau eines dispersionsbalancierten interferometrischen Autokorrelators. Die Messung einer interferometrischen FROG-Spur erreicht man über die spektrale Auflösung des Autokorrelationssignals. Durch eine direkte Triggerung der schnellen Spektrometerkamera über das „Encoder“-Signal eines konstant fahrenden Verschiebetisches (Verzögerung τ) gelingt die störungsfreie Aufnahme der hochmodulierten IFROG-Struktur (ENC, „Encoder“; OMA, Spektrometer).

liegen bei 100 Hz bis 200 Hz, wodurch sich Durchfahrsgeschwindigkeiten des Impulsabstandes von 20 fs/s bis 40 fs/s ergeben. Damit dauert die Aufnahme einer kompletten IFROG-Spur eines Sub-10-fs-Impulses mit all ihrer modulatorischen Struktur lediglich ein paar Sekunden. Des Weiteren wird eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses durch die Mittelung über 10 unabhängig aufgenommene IFROG-Spuren erzielt, wobei auch lokale Fehler in der Struktur einzelner Spuren nicht mehr ins Gewicht fallen. Beispiele so gemessener IFROG-Spuren werden in den nächsten Abschnitten gezeigt.

3.3.5 Die Filterung der FM-FROG-Spur

In diesem Abschnitt wird die Prozedur einer phasenempfindlichen Filterung der FM-FROG-Spur aus einer IFROG-Messung näher erläutert. Dabei wird die Information der Gleichung (3.17) mittels Fourierfilterung aus dem IFROG-Signal der Gleichung (3.14) isoliert.

Abbildung 3.19 a) zeigt die experimentelle IFROG-Spur eines komplexen, breitbandigen Impulses nach Fouriertransformation bezüglich der Impulsverzögerung τ , was zur Einführung der Verzögerungsfrequenz ω_τ führt. Wie be-

reits dargelegt wurde, enthalten die in Abbildung 3.19 a) auftauchenden Bänder die Amplituden der verschiedenen modulatorischen Anteile einer IFROG-Spur. So ist im ersten Seitenband bei $\omega_\tau \approx \omega_0$ die FM-FROG-Amplitude kodiert. Eine Isolierung dieses Seitenbandes gelingt über die Multiplikation der Daten mit einem Band aus Super-Gauß-Filterfunktionen, deren Grenzen in Abbildung 3.19 a) als gestrichelte Linien eingezeichnet sind. Lediglich der modulierende Kosinus-Anteil des dritten Terms der Gleichung (3.14) überlagert nun noch die FM-FROG-Amplitude. Interessanterweise ermöglicht das zur Impulsrekonstruktion an sich wertlose SHG-Seitenband eine phasenempfindliche Rekonstruktion der FM-FROG-Spur.

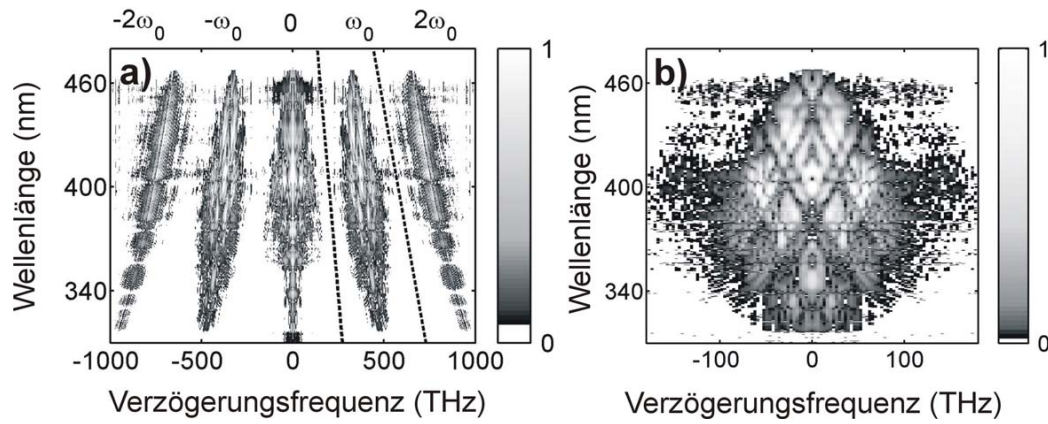


Abbildung 3.19: Phasenempfindliche FM-FROG-Filterung: a) Experimentelle IFROG-Spur eines breitbandigen, komplexen Impulses nach Fouriertransformation bezüglich der Verzögerung. Das Basisband enthält die SHG-FROG-Spur und einen SHG-Untergrund. Zwei Seitenbänder bei der fundamentalen Frequenz $\pm\omega_0$ und zwei bei der zweiten Harmonischen $\pm2\omega_0$ können unterschieden werden. Die gestrichelten Linien markieren die Grenzen der Super-Gauß-Filterfunktion, die zur Isolierung des FM-FROG Seitenbandes verwendet wird. b) FM-FROG-Spur im fouriertransformierten Raum. Aufgrund der phasenempfindlichen Filterung des fundamentalen Interferenz-Seitenbandes in a) ist dieses Band auf die Position des Basisbandes projiziert.

Ein Vergleich der gemessenen Spur in Abbildung 3.19 a) mit dem numerischen Beispiel der Abbildung 3.14 b) lässt erkennen, dass das SHG-Seitenband der experimentellen Spur bei $\omega_\tau = \pm2\omega_0$ von einer scharfen Linienform abweicht. Dieses Verwaschen des SHG-Seitenbandes ist ein Indiz für experimentelle Schwankungen in der τ -Bestimmung. Bei näherer Betrachtung des zugehörigen vierten Terms der Gleichung (3.14) wird deutlich, dass dieses Seitenband die Phase $\varphi_{\text{mod}} = (2\omega_0 + \Delta\omega)\tau$ kodiert. Mit Hilfe des Takeda-

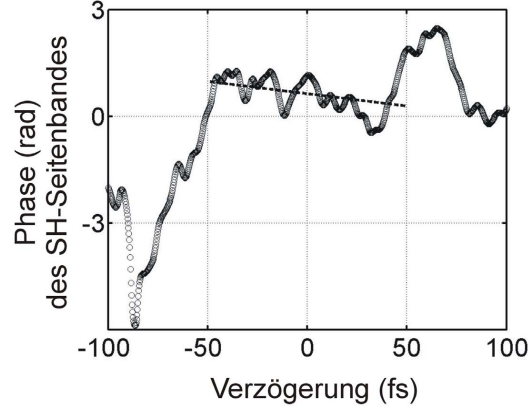


Abbildung 3.20: Phasenreferenz $\varphi_{\text{mod}} = (2\omega_0 + \Delta\omega)\tau$ nach Abzug des τ -abhängigen, linearen Anteils. Diese Beispiel-Phase wurde aus dem SHG-Seitenband der Abbildung 3.19 a) bei einer Wellenlänge von 400 nm gewonnen. Die RMS-Phasenschwankung im zentralen 100-fs-Bereich (gestrichelte Line) beläuft sich auf unter 0,5 rad, was einem zeitlichen Fehler von 0,1 fs entspricht.

Algorithmus [106] kann diese Referenzphase rekonstruiert werden. Der in Abbildung 3.20 gezeigte exemplarische Phasenverlauf veranschaulicht das charakteristische Verhalten des verwendeten Verschiebetisches. So sind die ersten 50 fs durch den Beschleunigungsvorgang des Tisches gekennzeichnet. Im zentralen Bereich der Spur, zwischen $\tau = -50$ fs und $+50$ fs, entspricht der RMS-Phasenjitter einem Fehler in τ von nur 0,1 fs. Allerdings kann diese Phaseninformation zu mehr als zur bloßen Fehlerabschätzung herangezogen werden. Der Zugang zu dieser Referenzphase ermöglicht nun einerseits eine Korrektur von Phasensprüngen, solange für benachbarte Kamerateaschüsse $|\varphi_{\text{mod}}(\tau_l) - \varphi_{\text{mod}}(\tau_{l+1})| \ll \pi$ gilt. Andererseits kann diese, in der IFROG-Spur eingebettete Referenzphase φ_{mod} zur phasenempfindlichen Rekonstruktion der Amplitude des $\propto \cos(\varphi_{\text{mod}}/2)$ fundamentalen Interferenzterms benutzt werden. Die Vorgehensweise bei einer phasenempfindlichen Rekonstruktion der FM-FROG-Spur aus einer IFROG-Messung ist demnach die folgende: Nach der Isolierung eines fundamentalen Seitenbandes in der Fourier-transformierten Darstellung der IFROG-Spur wird dieses in den ursprünglichen Raum der Verzögerung τ zurück Fourier-transformiert und anschließend mit dem Faktor $\cos(\varphi_{\text{mod}}/2)$ multipliziert. Zuvor wurde die Referenzphase φ_{mod} in der beschriebenen Weise aus dem SHG-Seitenband der gleichen IFROG-Spur gewonnen. Diese Methode eliminiert den Kosinus im dritten Term der Gleichung (3.14) und unterdrückt gleichzeitig Fluktuationen im Verzögerungsparameter τ . Das Ergebnis dieser Filterung ist in Abbildung 3.19 b) zu sehen. Die abgebildete Struktur stellt die FM-FROG-Spur

in ihrer Fourier-transformierten Form dar. Im Vergleich zur Abbildung 3.19 a) taucht das fundamentale Interferenzband hier an der Position der Verzögerungsfrequenz $\omega_\tau = 0$ auf, ist demnach unmoduliert, aber auch frei von Jitter-Artefakten in τ .

3.3.6 Impulsmessungen

In diesem Abschnitt wird das Verfahren des interferometrischen FROG an verschiedenen optischen Impulsen getestet und die Anwendbarkeit der Methode unter praktischen Gesichtspunkten diskutiert.

Wie bereits aus der Motivation des Verfahrens deutlich wird, liegen die Vorteile des IFROG in der Charakterisierung von Sub-10-fs-Impulsen. In der Tat stellt die Messung eines längeren Impulses eine größere experimentelle Herausforderung dar, da die Aufnahme einer fehlerfreien IFROG-Spur über den ausgedehnten Verzögerungsbereich kritischer ist. Das gleiche Argument gilt auch im Falle einer zeitlich ausgedehnten, komplizierten Impulsstruktur mit weniger als 10 fs andauernden Intensitätsspitzen. Hier liegt die Herausforderung in der Auflösung der komplexen Substruktur.

Ein langer Impuls

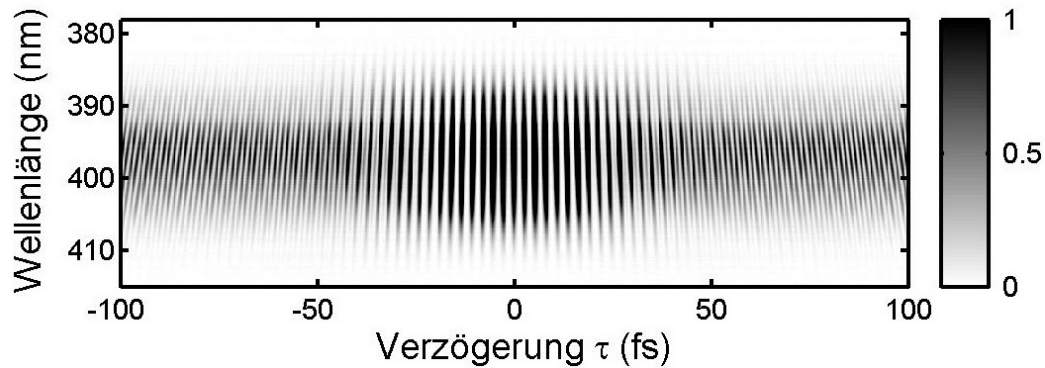


Abbildung 3.21: Interferometrisches FROG (IFROG): spektral aufgelöste interferometrische Autokorrelation eines fast Fourier-limitierten 29 fs Impulses eines Ti:Saphir-Verstärkersystems.

Abbildung 3.21 zeigt die gemessene interferometrische FROG-Spur eines 29 fs dauernden Impulses, wie ihn ein Ti:Saphir Verstärkersystem liefert. In diesem Beispiel wird nur der zentrale Teil der IFROG-Spur ($\tau \approx \pm 50$ fs) von der

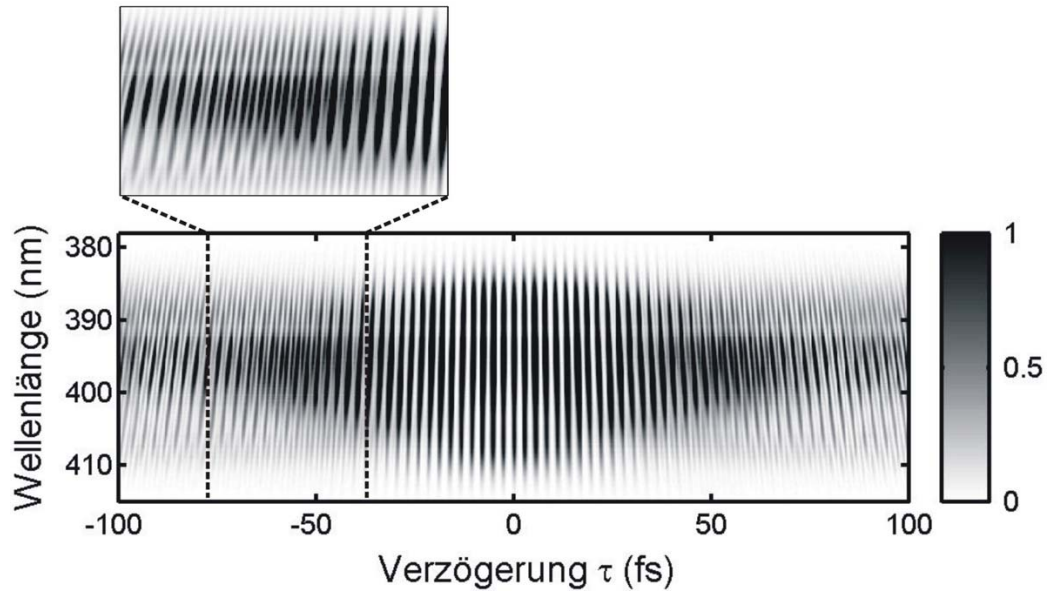


Abbildung 3.22: Interferometrische FROG-Spur des Impulses der Abbildung 3.21 nach Transmission durch 1 cm Suprasil ($GDD = 360 \text{ fs}^2$). Der vergrößerte Ausschnitt zeigt eine Zone, in dem die fundamentale Modulation aufgrund des Chirps in Gegenphase übergeht. In solchen Bereichen kehrt sich das Vorzeichen der FM-FROG-Amplitude um, so dass sich negative Amplituden ausbilden.

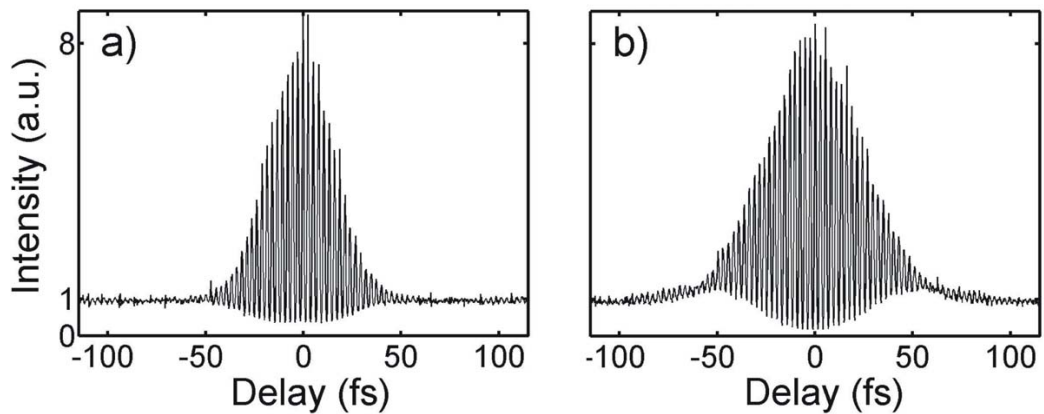


Abbildung 3.23: Die Integration einer IFROG-Spur längs ihrer Wellenlängenachse führt zur interferometrischen Autokorrelation des Impulses: „Delay-Marginals“ der IFROG-Messungen a) aus Abbildung 3.21 und b) aus Abbildung 3.22.

fundamentalen Modulation dominiert, wie auch aus dem zugehörigen „Delay-Marginal“ der Abb. 3.23 a) hervorgeht.

Die Auswirkungen eines Chirps werden in Abbildung 3.22 aufgezeigt. Für diese Aufnahme wurde zusätzliche Materialdispersion in Form eines 1 cm dicken Suprasil-Glasblocks ($GDD = 360 \text{ fs}^2$) in den Strahlengang eingebracht. Neben einer einfachen Ausdehnung des Bereiches fundamentaler Modulation [siehe auch Abb. 3.23 b)] beeinflusst der Chirp auch die Substruktur der IFROG-Spur. So löst der vergrößerte Ausschnitt der Abb. 3.22 bei $\tau \approx -50 \text{ fs}$ einen Bereich auf, in dem die fundamentale Modulation allmählich in Gegenphase zur Modulation bei $\tau = 0$ übergeht. Regionen, in denen sich die fundamentale Modulation in Gegenphase befindet, bilden in der zugehörigen FM-FROG Darstellung Bereiche negativer Amplitude aus. Deutlich wird dieser Sachverhalt bei einem direkten Vergleich der IFROG-Spur der Abb. 3.22 mit der herausgefilterten FM-FROG-Spur der Abb. 3.25 a). Auch in der FM-FROG-Spur des ungechirpten Impulses sind schwache negative Bereiche vorhanden [siehe Abbildung 3.24 a)]. Diese lassen sich allerdings auf kleine Abweichungen in den Flanken der Impulsform zurückführen [vgl. Abbildungen 3.24 b) und 3.26 a)]. Eine gute Sichtbarkeit solch geringer Signale in der FM-FROG-Spur verdeutlicht die hohe Empfindlichkeit der Methode.

Die simulierten FM-FROG-Spuren der Abbildungen 3.24 b) und 3.25 b) wurden über den modifizierten GP-Algorithmus aus den zugehörigen Messungen a) iterativ rekonstruiert. Für diese relativ einfach strukturierten Impulse konnten die FM-FROG-Spuren auf ein Gitter von $N=64$ angepasst werden. Die Konvergenz des modifizierten GP-Algorithmus auf einen FROG-Fehler unter 0,01 [siehe Gleichung 2.52] und die gute visuelle Übereinstimmung zwischen Experiment und Rekonstruktion beweist die Funktionstüchtigkeit des Algorithmus. Zu beachten ist, dass der Wert des FM-FROG-Fehlers nicht mit einem SHG-FROG-Fehlerwert vergleichbar ist. Die lineare Abhängigkeit des FM-FROG-Signals vom FROG-Feld und die modulierte Struktur der Spur lassen einen höheren Fehlerwert erwarten. Allgemein wurde stets eine bessere Konvergenz für strukturiere FM-FROG-Spuren beobachtet, wie auch im Falle des gechirpten Impulses.

Die aus den Abbildungen 3.24 a) und 3.25 a) ermittelten Impulsformen sind entsprechend in Abb. 3.26 a) und b) zu sehen, wobei die Impulsdauer des ungechirpten Impulses 29 fs und die des gestreckten Impulses 55 fs beträgt. Zur weiteren Kontrolle wurde die Dauer des ungechirpten Impuls zusätzlich mit dem SPIDER-Verfahren gemessen und zu 26 fs bestimmt. Diese fällt etwas geringer gegenüber der FM-FROG Rekonstruktion aus, was mit einer unzureichenden Konvergenz des Algorithmus im Falle unstrukturierter Impulse erklärt werden kann. Die Erfahrung zeigt, dass die Halbwertsbreite eines rekonstruierten „Delay-Marginals“ stets größer als der gemessene Wert ist. Das

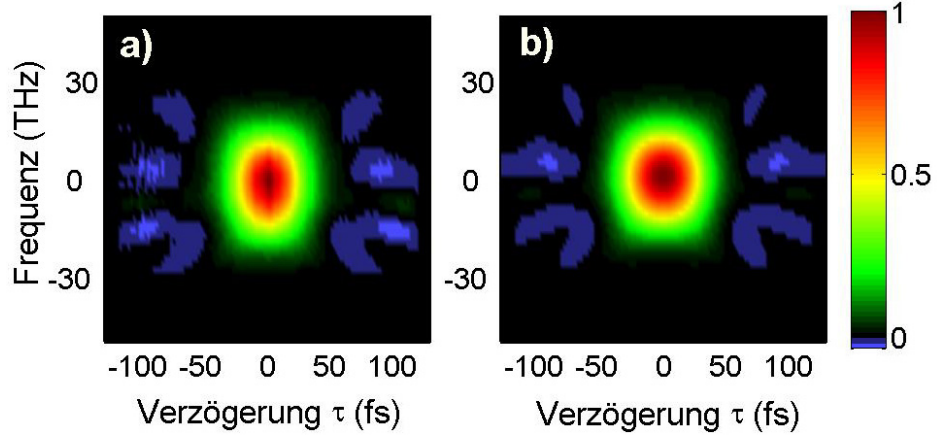


Abbildung 3.24: FM-FROG-Spuren eines ungechirpten 29 fs Impulses. a) Aus IFROG-Messung der Abbildung 3.21 gefiltertes FM-FROG. b) Unter Verwendung des modifizierten GP-Algorithmus rekonstruierte FM-FROG-Spur. Der FROG-Fehler dieser Rekonstruktion auf einem $N=64$ Gitter beträgt 0,0098. Der ermittelte zeitliche Intensitäts- und Phasenverlauf des zugehörigen Impulses ist in Abbildung 3.26 a) dargestellt.

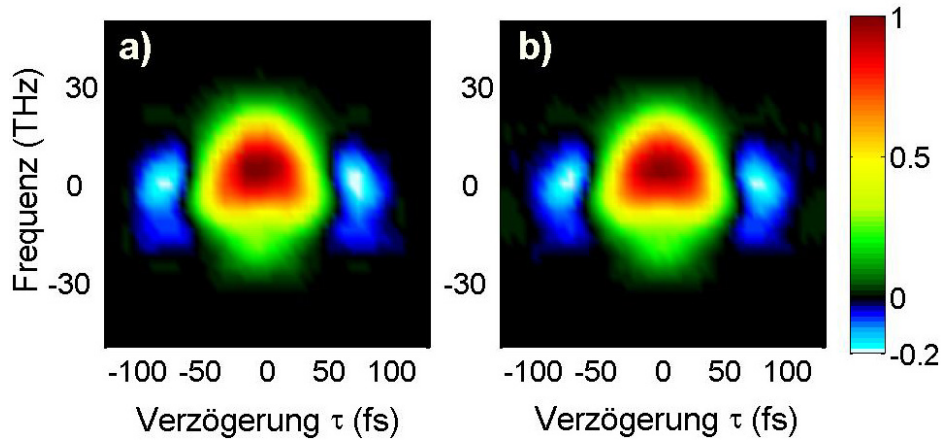


Abbildung 3.25: FM-FROG-Spuren eines gechirpten Impulses. a) Aus IFROG-Messung der Abbildung 3.22 gefiltertes FM-FROG. b) Unter Verwendung des modifizierten GP-Algorithmus rekonstruierte FM-FROG-Spur. Dephasierte Regionen der fundamentalen Modulation sind als negative Bereiche blau dargestellt. Der FROG-Fehler dieser Rekonstruktion auf einem $N=64$ Gitter beträgt 0,0055. Die ermittelten zeitlichen und spektralen Intensitäts- und Phasenverläufe des zugehörigen Impulses sind jeweils in Abbildung 3.26 b) und 3.26 c) dargestellt.

FM-FROG-Verfahren tendiert in solchen Fällen zu einer Überschätzung der

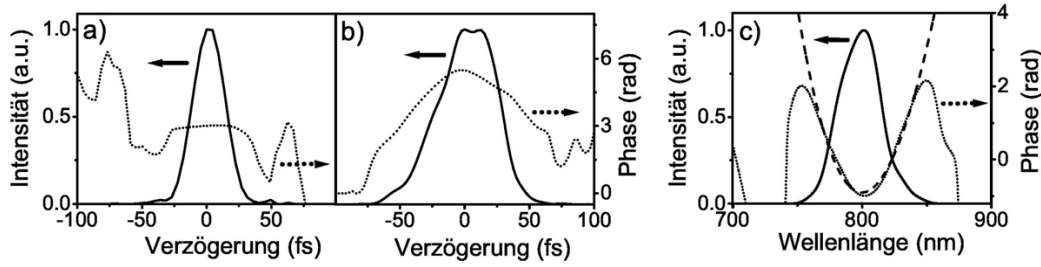


Abbildung 3.26: Aus den FM-FROG-Spuren rekonstruierter Intensitäts- (durchgezogene Linie) und Phasenverlauf (gestrichelte Linie) des jeweiligen Impulses. a) Ungechirpter 29 fs Impuls eines Ti:Saphir Verstärkersystems, gewonnen aus Abb. 3.24. b) Impuls aus a), der aufgrund der Dispersion von 1 cm Suprasil auf eine Dauer von 55 fs gestreckt wurde (vgl. Abb. 3.25). c) Darstellung des Impulses aus b) im Spektralraum. Gestrichelte Linie: Fit der Phase entsprechend einer Dispersion von $\text{GDD} = 400 \text{ fs}^2$.

Impulsdauer. Dieses Verhalten wird auch bei anderen FROG-Varianten beobachtet.

In der spektralen Darstellung des gechirpten Impulses [Abbildung 3.26 c)] kann die Dispersion des Suprasil-Glasblocks direkt mit der ermittelten spektralen Phase des Impulses verglichen werden. Die positive Phasenkrümmung von 400 fs^2 stimmt gut mit dem über die Sellmeier-Gleichungen berechneten Dispersionswert des Materials von 360 fs^2 überein. Ein Vergleich der FM-FROG-Spuren der Abbildungen 3.25 und 3.24 lässt eine leichte spektrale Verbreiterung des gechirpten Impulses erkennen. Außerdem weisen die negativen Bereiche eine konvexe Krümmung auf. Die Beispiele der Abbildung 3.15 zeigen für rein dispersive Einflüsse flache oder konkave Seitenbänder, wohingegen SPM zu konvexen Seitenbändern führt. Zusätzliche nichtlineare Effekte im Glasblock spiegeln sich demnach direkt in der FM-FROG Messung wider. In speziellen Fällen kann also die Form der Seitenbänder einer FM-FROG-Spur bereits ohne eine iterative Impulsrekonstruktion einen Hinweis auf die zugrundeliegende Physik geben.

Ein komplexer Impuls

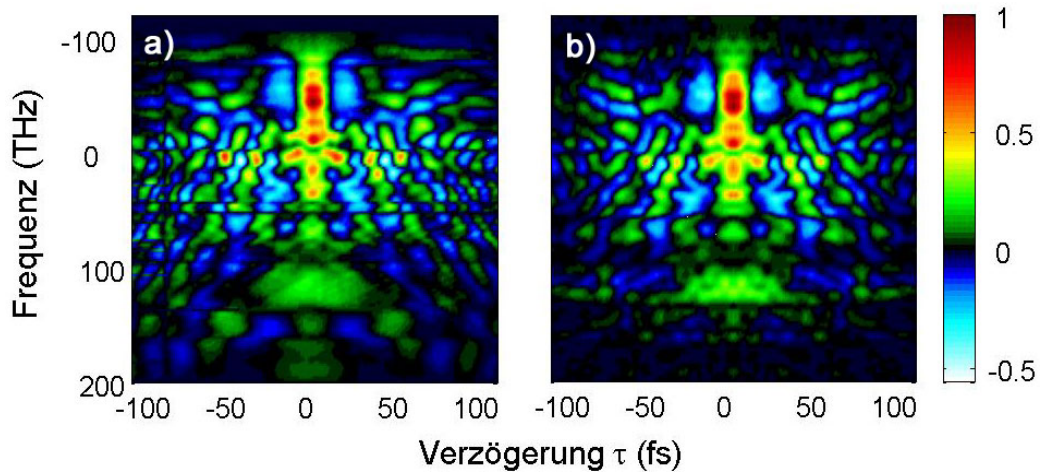


Abbildung 3.27: FM-FROG Spur eines komplexen Superkontinuum-Impulses mit einem Oktaven-breiten Spektrum im Bereich von 490 nm bis 1000 nm und einer Impulsenergie von $25 \mu\text{J}$. a) Aus der IFROG-Messung der Abb. 3.19 phasenempfindlich gefilterte Spur. b) Mittels des modifizierten GP-Algorithmus rekonstruierte Spur. Der FROG-Fehler dieser Rekonstruktion auf einem $N=128$ Gitter beträgt 0,03. Den ermittelten zeitlichen Intensitäts- und Phasenverlauf des zugehörigen Impulses findet man in Abb. 3.28.

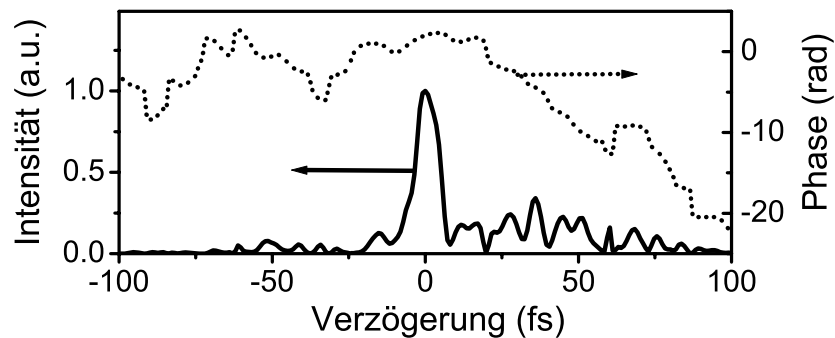


Abbildung 3.28: Zeitliche Intensitäts- (durchgezogene Linie) und Phasenstruktur (punktierte Linie) des aus der FM-FROG-Messung der Abb. 3.27 iterativ rekonstruierten Impulses. Das unvollständig komprimierte Hohlfaser-Superkontinuum weist einen dominierenden 8 fs Impuls und einen starken Untergrund an Satellitenimpulsen auf.

Trotz der prinzipiellen Anwendbarkeit der IFROG-Methode auf alle Impulsformen liegt ihre Stärke in der Charakterisierung komplexer Impulse mit

einer zeitlichen Strukturierung im Sub-10-fs-Bereich. Das Testbeispiel der Abbildung 3.27 a) zeigt die FM-FROG-Spur einer schwer zu analysierende Feldstruktur, die in einem zweistufigen Hohlfaserkompressor erzeugt wurde. Unter unzureichend angepasster Dispersionskompensation entsteht hierbei eine ultrabreitbandige, komplexe Struktur aus mehreren Sub-10-fs-Impulsen verschiedener Amplitude. Während die Impulsrekonstruktion über die SHG-FROG-Spur aufgrund schlechter Konvergenz verworfen werden muss, gelingt eine Rekonstruktion der FM-FROG-Spur problemlos [siehe Abb. 3.27 b)]. Obwohl die rekonstruierte Feldstruktur (Abb. 3.28) noch einen recht großen FROG-Fehler von 0,03 aufweist, besitzt die zugehörige FM-FROG-Spur der Abbildung 3.27 b) einen hohen Grad an Übereinstimmung mit der Messung. Der zentrale Impuls der Rekonstruktion hat eine Dauer von 8 fs und umfasst etwa zwei Drittel der gesamten Energie. Mehrere Satellitenimpulse begleiten den Hauptimpuls in einem zeitlichen Umfeld von 80 fs. Trotz dieser hochstrukturierten Feldverteilung deutet die Form der dephasierten Seitenbänder der FM-FROG Messung auf zumeist unkompensierte dritte Ordnung Dispersion.

3.4 Ein Vergleich der Methoden

Zum direkten Vergleich der vorgestellten Impulscharakterisierungstechniken wurde ein kommerzieller Ti:Saphir Oszillator (Femtolasers Rainbow) ausgewählt, der stabil Impulsdauern unter 7 fs mit einer Impulsenergie von 2,5 nJ liefert.

Das klassische SPIDER-Verfahren

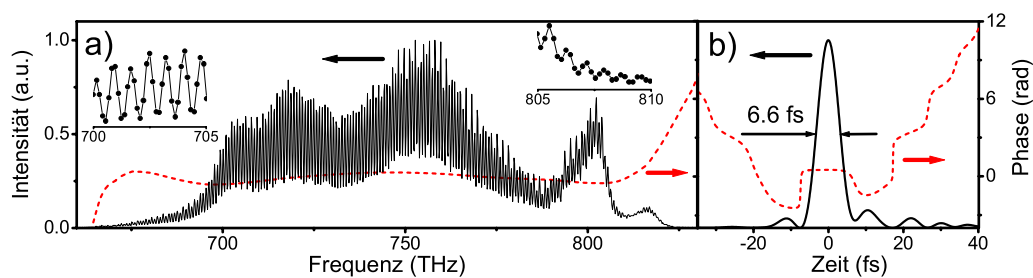


Abbildung 3.29: SPIDER-Messung: a) SPIDER-Interferogramm (durchgezogene Linie) und rekonstruierte spektrale Impulsphase (rot gestrichelt); b) rekonstruiertes zeitliches Impulsprofil (durchgezogene Linie) und zeitliche Impulsphase (rot gestrichelt). Die Impulsdauer beträgt 6,6 fs.

Die SPIDER-Messung des Rainbow-Impulses wurde mit dem in Abbildung 3.1 dargestellten Aufbau unter Verwendung eines $150\text{ }\mu\text{m}$ dicken Etalons zur Erzeugung der Impulsrepliken durchgeführt. In Abbildung 3.29 a) ist das SPIDER-Interferogramm (schwarze durchgezogene Linie) der beiden spektral gescherten Impulsrepliken neben der rekonstruierten Impulsphase (rot gestrichelt) im SHG-Frequenzbereich eingezeichnet. Die interferometrische Modulation konnte im Spektralbereich von 670 THz bis 820 THz aufgelöst werden. Dieser Bereich, der 98 % der Impulsenergie enthält, kennzeichnet den Ausschnitt, in dem eine erfolgreiche Rekonstruktion der spektralen Phase gewährleistet ist. Das Ergebnis ist in Form der rekonstruierten zeitlichen Impulsform mit einer Dauer von 6,6 fs in 3.29 b) zu sehen. Die ebenfalls eingezeichnete zeitliche Phase (rot gestrichelte Linie) ist im wesentlichen flach über die Dauer des Hauptimpulses und weist Phasenstufen der Höhe π zwischen den Satellitenimpulsen auf. Der Satellitenimpulsgehalt summiert sich auf lediglich 15% der gesamten Impulsenergie, wobei die Spitzenleistung unter 10% der des Hauptimpulses liegt.

Das SEA-SPIDER-Verfahren

Abbildung 3.30 a) zeigt ein SEA-SPIDER Interferogramm zweier spektral verscherter Rainbow-Impulse, das mit dem Aufbau der Abbildung 3.11 bei einer spektralen Impulsscherung von 14 THz aufgenommen wurde. In der momentanen Konfiguration erweist sich die Empfindlichkeit der SEA-SPIDER Methode als etwas geringer als die des SPIDER-Aufbaus, da für ein zweidimensionales Interferogramm im Vergleich zum eindimensionalen Fall pro Kamerapixel weniger Photonen zur Verfügung stehen. Allerdings kann dieser Nachteil ausgeräumt werden, wenn eine statistische Mittelung der rekonstruierten spektralen Phase entlang der Raumkoordinate x [siehe Gleichung (3.12)] durchgeführt wird. Ein wesentlicher Vorteil des SEA-SPIDERS liegt in seiner klaren Auflösung der räumlichen Modulation über den gesamten spektralen Messbereich. Die Phasenrekonstruktion gelingt daher über einen etwa 5% breiteren Spektralbereich, als es beim SPIDER der Fall ist. Gerade in den Randbereichen des Spektrums ist die Phasenrekonstruktion mittels SEA-SPIDER robuster, als es beim klassischen SPIDER der Fall ist.

Eine genaue Betrachtung der Abbildung 3.30 a) zeigt im Wesentlichen flache Interferenzstreifen mit einem schwachen Anstieg, der einer Dispersion von $\text{GDD} \approx -15\text{ fs}^2$ entspricht. Die Rekonstruktion der zeitlichen Impulsstruktur dieser Messung ist in Abbildung 3.30 b) zu sehen. Um eine direkte Vergleichbarkeit mit dem Ergebnis der SPIDER-Messung herzustellen, muss die etwa 50 cm längere Propagationsstrecke zum SPIDER-Aufbau berücksichtigt

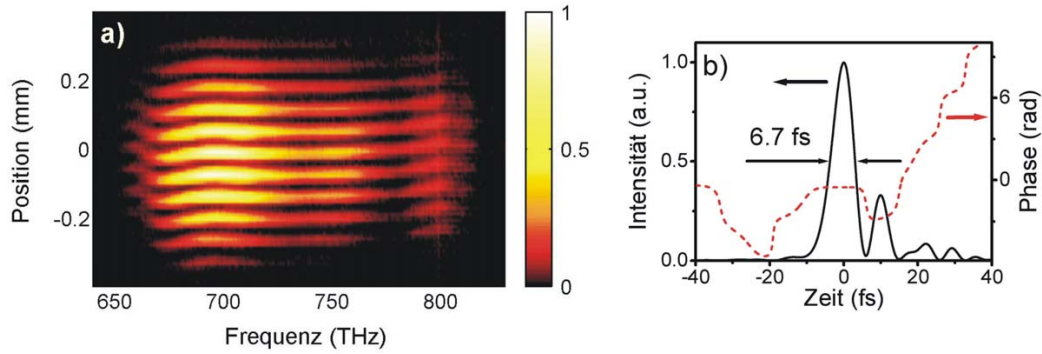


Abbildung 3.30: SEA-SPIDER-Messung: a) SEA-SPIDER-Interferogramm des Impulses. Abweichungen von einer frequenzunabhängigen, rein parallelen Form der Interferenzstreifen zeugt von frequenzabhängiger Gruppenverzögerung. b) Rekonstruiertes zeitliches Impulsprofil (durchgezogene Linie) und zeitliche Impulsphase (rot gestrichelt). Die Impulsdauer beträgt 6,7 fs.

werden. Aus diesem Grund wurde der spektralen Phase der SEA-SPIDER-Messung eine Krümmung entsprechend einer Dispersion von $\text{GDD} = 10 \text{ fs}^2$ hinzugefügt. Zeitliche Phase (gestrichelte Linie) und die Halbwertsdauer des Impulses von 6,7 fs sind praktisch identisch zur SPIDER-Messung. Lediglich der Impulssatellit bei $t = 10 \text{ fs}$ bekommt in dieser Rekonstruktion mehr Gewicht und erreicht 30% der Spitzenintensität.

Das IFROG-Verfahren

Im Rahmen des hier gezogenen Vergleichs ist diese Methode bezüglich der Messung als auch der Auswertung die zeitaufwändigste. Die Aufnahme eines Verzögerungsbereiches von $\tau = \pm 100 \text{ fs}$ mit einer 2048-Pixel-Zeilenkamera liefert fast 1 Million Datenpunkte.

Die aus der IFROG-Spur der Abbildung 3.31 a) phasenempfindlich gefilterte FM-FROG-Spur des Rainbow-Impulses ist in Abbildung 3.31 b) dargestellt. Neben der in dieser Spur enthaltenen Phaseninformation des Impulses liegt ein wesentlicher Vorteil einer FM-FROG-Messung gegenüber dem klassischen SHG-FROG in einer, mit zunehmendem Impulsabstand τ langsamer abnehmenden Amplitude. Besonders deutlich wird dies in Abbildung 3.31 b), in der noch selbst bei einer Verzögerung τ , die dem 20-fachen der eigentlichen Impulsdauer entspricht, klare FM-FROG-Strukturen sichtbar sind. Im Vergleich zu anderen FROG-Varianten führt diese Eigenart des FM-FROG zu einer effektiv höheren Detektionsempfindlichkeit intensitätsarmer Regionen des Impulses. Der Rekonstruktion kleiner Satellitenimpulse ist nun ein ver-

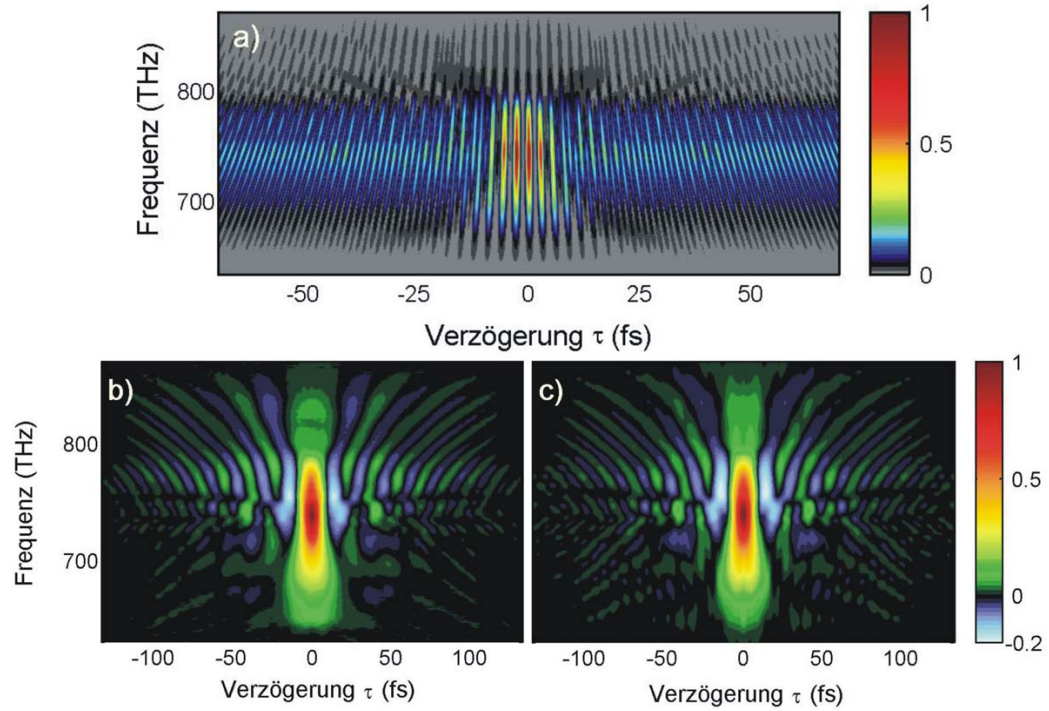


Abbildung 3.31: Interferometrische FROG-Messung: a) Zentraler Ausschnitt der spektral aufgelösten Messung einer interferometrischen Autokorrelation. b) FM-FROG-Messung: Phasenempfindlich gefilterte Amplitude des bei der Impulsträgerfrequenz modulierten Anteils der IFROG-Spur. c) Iterativ rekonstruierte FM-FROG-Spur (Gitter: 256×256 , FROG-Fehler: 0,004 nach 500 Iterationen). Zu beachten ist, dass der in b) und c) aufgetragene Zeitbereich doppelt so groß wie der in a) ist.

gleichbar größeres Gewicht gegenüber der des Hauptimpulses eingeräumt.

Die Anwendung des modifizierten GP-Algorithmus konvergiert innerhalb von 500 Iterationen zur rekonstruierten FM-FROG-Spur der Abbildung 3.31 c). Diese, auf einem Gitter von 256×256 Punkten durchgeführte Rekonstruktion liefert einen FROG-Fehler von 0,004. Abbildung 3.32 zeigt die zugehörige ermittelte Intensität (durchgezogene Linie) und Phase (gestrichelte Linie) des Impulses im Frequenz- (a) und Zeitraum (b). In dieser Darstellung wurde bereits die Dispersion des 1 mm dicken Strahlteilers und die ca 50 cm kürzere Distanz im Vergleich zur SPIDER-Messung berücksichtigt. Insgesamt musste eine Phasenkrümmung entsprechend einer Dispersion von $GDD = 25 \text{ fs}^2$ von der ursprünglichen spektralen Phase abgezogen werden. Die so ermittelte Impulsdauer von 6,9 fs stimmt gut mit den vorherigen Resultaten überein.

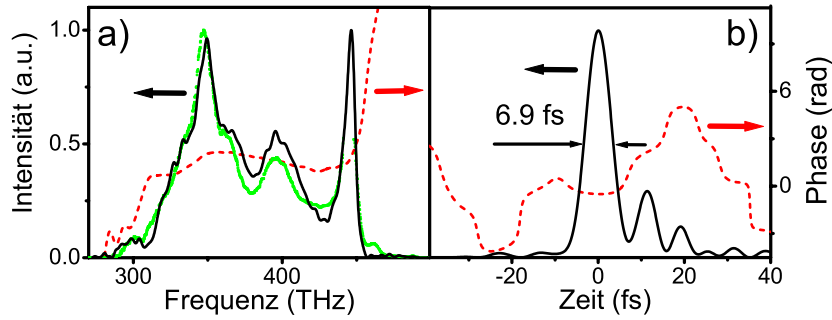


Abbildung 3.32: Ergebnis der FM-FROG-Rekonstruktion: a) Ermittelte spektrale Intensität (durchgezogene Linie) und spektrale Impulsphase (rot gestrichelte Linie). Ein unabhängig gemessenes Impulsspektrum (grün gepunktet) dient dem Vergleich. b) Rekonstruiertes zeitliches Impuls- (durchgezogene Linie) und Phasenprofil (rot gestrichelt). Die Impulsdauer beträgt 6,9 fs.

Die gleiche Aussage gilt für die Phasen- und Satellitenimpulsstruktur der FM-FROG-Rekonstruktion, insbesondere im Vergleich mit dem SEA-SPIDER-Ergebnis.

Die interferometrische Autokorrelation

Die interferometrische Autokorrelation der Abbildung 3.33 a) wurde mit einem kommerziellen Gerät (Femtolasers Femtometer) aufgenommen, das speziell für die Vermessung breitbandiger Sub-10 fs-Impulse konzipiert ist. Die graue Linie der Abbildung 3.33 a) basiert auf einer einzelnen Messung über den Verzögerungsbereich, der durch Fourierfilterung von hochfrequentem Rauschen gereinigt wurde. Das Verhältnis zwischen SHG-Untergrund und dem Signalmaximum bei $\tau = 0$ beträgt 1:7,5 und liegt damit nahe dem theoretischen Idealfall von 1:8 (siehe Abschnitt 2.4.1). Zur Kalibration der τ -Achse wurde die fundamentale Periodendauer der IAC zu 2,69 fs über die Bestimmung der Zentralwellenlänge des Impulsspektrums von 806 nm festgelegt. Die aus der IAC gefilterte Intensitätsautokorrelation (AC) ist als schwarze Kurve in Abbildung 3.33 a) eingezeichnet. Der FWHM-Betrag der AC von 10,0 fs ergibt eine Impulsdauer von 6,5 fs unter der Annahme eines sech^2 -förmigen Impulses (vergleiche Tabelle 2.1). Ausgehend von der transformlimitierten Impulsdauer von 5,2 fs ergibt ein Fit zwischen gemessener und berechneter AC, unter Anpassung des Chirps, eine Impulsdauer von 6,3 fs. Beide Methoden können jedoch nicht die Satellitenimpulsstruktur berücksichtigen.

Wie bereits in Abschnitt 2.4.1 diskutiert wurde, ist eine eindeutige iterative Impulsrekonstruktion aus der Kombination aus experimenteller IAC und

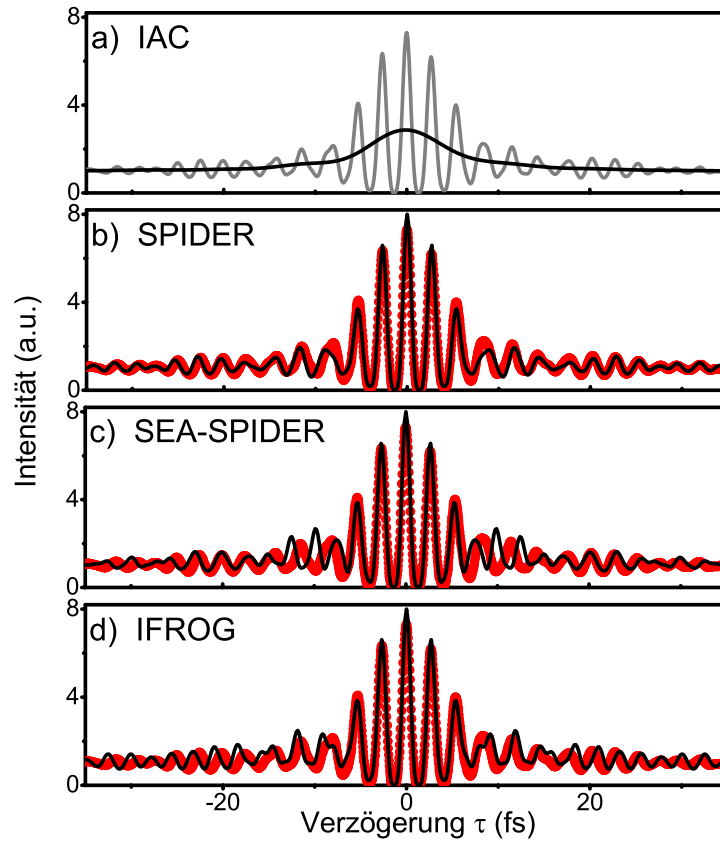


Abbildung 3.33: Vergleich einer gemessenen interferometrischen Autokorrelation [IAC, graue Linie in a) und rot gepunktet in b), c) und d)] mit berechneten Spuren [schwarz durchgezogene Linie in b), c) und d)]. Die simulierten IACs wurden aus den verschiedenen gemessenen Feldstrukturen des Impulses gewonnen. a) Gemessene IAC (graue durchgezogene Linie) und untergrundbehaftete Intensitätsautokorrelation (AC, schwarze durchgezogene Linie). Die AC wurde über Fourierfilterung des DC-Anteils aus der IAC gewonnen. Die FWHM der AC beträgt 10,03 fs.

dem Impulsspektrum nicht möglich. Allerdings liefert die gemessene IAC eine empfindliche und unabhängige Kontrollmöglichkeit der Resultate anderer Charakterisierungsmethoden. In den Abbildungen 3.33 b), c) und d) wird daher die gemessene IAC direkt mit einer berechneten IAC verglichen, die aus den ermittelten Intensitäts- und Phasenverläufen der Abbildungen 3.29 b), 3.30 b) und 3.32 b) gewonnen wurde. Die durch SPIDER rekonstruierte IAC stimmt mit der gemessenen sehr gut überein. Lediglich die Intensität der Impulssatelliten wird im SPIDER-Ergebnis etwas unterschätzt. Im Gegensatz hierzu sind diese Satelliten beim IFROG und SEA-SPIDER gegenüber der gemessenen IAC ausgeprägter. Zusätzlich kommt es beim SEA-

SPIDER zum Dephasieren der interferometrischen Struktur beider IACs bei $\tau = \pm 10$ fs, möglicherweise hervorgerufen durch die spektral breitbandigere Phasenrekonstruktion.

Ein Vergleich rekonstruierter spektraler Phasen

Die gute Übereinstimmung der gemessenen Impulsformen und der spektralen Phasen macht deutlich, dass sich jede der drei vorgestellten Impulscharakterisierungstechniken zur Messung von ultrakurzen optischen Impulsen im Impulsdauerbereich weniger optischer Feldzyklen eignet. Alle Methoden ergaben eine Impulsdauer des Rainbow-Oszillators im Bereich von $6,7 \pm 0,2$ fs, was einer relativen Fehlerspanne von 5% entspricht. Die mit den jeweiligen Methoden ermittelten Impulsdauern spiegeln eine allgemeine Tendenz wider, die bereits in vorherigen vergleichenden Studien festgestellt wurde [115]. So liefert die IAC häufig eine zu geringe Impulsdauer, was über die Annahme einer bestimmten Impulsform erklärt wird. Im Gegensatz dazu tendiert das FROG-Verfahren eher zur Rekonstruktion geringfügig längerer Impulse, was durch eine vorzeitige Stagnation des iterativen Rekonstruktionsalgorithmus verursacht wird.

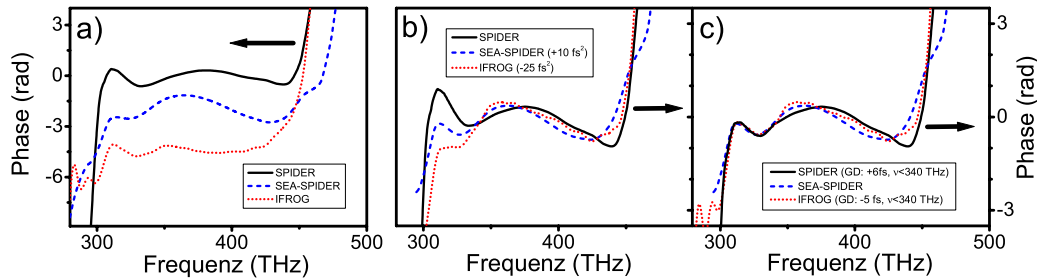


Abbildung 3.34: Vergleich der spektralen Phasen, die mit den verschiedenen vorgestellten Messmethoden ermittelt wurden: SPIDER (schwarz durchgezogene Linien), SEA-SPIDER (blau gestrichelte Kurven) und IFROG (rot gepunktete Kurven). a) Unkorrigierte Daten. Der Laser wurde mit Hilfe des SPIDERS auf kürzeste Impulsdauer optimiert. b) Korrigierte spektrale Phasen nach Berücksichtigung der unterschiedlichen Dispersionsbeträge im Strahlengang. c) Spektrale Phasen nach zusätzlicher Anpassung der Gruppenverzögerung unterhalb von 340 THz. Die Impuls- und Phasenprofile der Abbildungen 3.29 b), 3.30 b) und 3.32 b) wurden aus den in b) dargestellten spektralen Phasen berechnet.

Neben der Impulsdauer kommt auch der spektralen Impulsphase eine große Bedeutung zu, da diese dispersive Einflüsse auf die Impulsform aufdeckt. Abbildung 3.34 a) stellt die rekonstruierten spektralen Impulsphasen der

verschiedenen Methoden dar. Nach Berücksichtigung der Dispersionsunterschiede zwischen den einzelnen Messaufbauten, die durch unterschiedlich lange Strahlwege und die Strahlteiler verursacht wurden, erhält man die direkt vergleichbaren Phasenverläufe der Abbildung 3.34 b). Im zentralen Bereich von 340 THz bis 450 THz ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung der Phasen mit einer RMS-Abweichung von lediglich 0,2 rad. Das Wegbrechen der Phasen unterhalb von 340 THz geschieht an einer Stelle im Spektrum, die einen starken Intensitätsanstieg aufweist [siehe Abbildung 3.32 a)]. Trotz nahezu identischer Spektren, die an den verschiedenen Messtagen der Kontrolle der Laserstabilität dienten, können geringfügige Änderungen in der spektralen Leistungsdichte in solchen Bereichen mit starkem Anstieg stärkere Auswirkungen auf die rekonstruierte Phase haben. Andererseits kann ein solcher Phasenknick auch als Messartefakt auftauchen, dann allerdings bevorzugt in Regionen geringer spektraler Intensität im Falle stark modulierter Impulsspektren [107, 108].

Eine Anpassung der Steigung der spektralen Phasen von SPIDER und IFROG unterhalb von 340 THz zeigt nun auch eine hervorragende Übereinstimmung des Phasenverhaltens in diesem Bereich [siehe Abbildung 3.34 c)]. Eine solche Korrektur der Phasensteigung eines Spektralbereichs ändert dessen Gruppenverzögerung im Vergleich zu den Komponenten des restlichen Spektrums. Abweichungen in der relativen Gruppenverzögerung verschiedener spektraler Bereiche des Impulses wirkt sich in diesem Fall in Form einer veränderten Satellitenimpulsstruktur aus. Die Breite des Hauptimpulses wird jedoch hauptsächlich durch die globale Krümmung der spektralen Phase beeinflusst. Im vorgestellten Beispiel stimmt diese Krümmung bzw. die Gruppenlaufzeitdispersion der rekonstruierten Impulse innerhalb einer Toleranz von 4 fs^2 überein [114].

Kapitel 4

Anwendung der Impulscharakterisierung auf die Impulskompression

Eines der Hauptanwendungsgebiete der vollständigen Impulscharakterisierungsverfahren ist die Untersuchung und Optimierung moderner Verfahren der Impulskompression. Erst der direkte Zugang zur spektralen Phase des Impulses ermöglicht eine gezielte Kompensation dispersiver Einflüsse auf den optischen Impuls und damit eine Kompression desselben bis nahe an die durch die spektrale Breite festgelegte theoretische Grenze der Impulsdauer. In Kapitel 3 wurden bereits Sub-7-fs-Impulse untersucht, die direkt aus einem Ti:Saphir Oszillator stammen. Deren Impulsenergie von einigen nJ ist jedoch für eine Vielzahl von Experimenten, wie z.B. der Erzeugung höherer Harmonischer, nicht ausreichend. Impulskompressionstechniken außerhalb der Laserkavität öffnen jedoch das Fenster zu höheren Spitzenleistungen von optischen Impulsen mit nur wenigen Feldzyklen.

Die Verbreiterung des Ausgangsspektrums eines Impulses über einen nichtlinearen Prozess ist eine wesentliche Voraussetzung zur Impulsverkürzung. Die kürzeste, bandbreitenbegrenzte Impulsdauer ist jedoch erst bei einer kohärenten Überlagerung aller spektralen Impulskomponenten unter konstanter Gruppenverzögerung erreicht. Zur Impulskompression sind deshalb zwei Schritte von Bedeutung: ein nichtlinearer Vorgang zur spektralen Verbreiterung und ein anschließender Schritt der Dispersionskompensation.

Bereits Anfang der 1980er Jahre wurde die spektrale Verbreiterung von Pikosekundenimpulsen durch SPM in „Single-Mode“ Fasern untersucht [123]. Auf diese Weise konnte eine Impulskompression mit Hilfe von Gitter-Kompressoren

[124] bis in den Bereich unter einer Pikosekunde demonstriert werden [125]. Eine optimierte Kombination aus Gitter- und Prismenkompression [126] führte 1987 zum Rekordwert einer optischen Impulsdauer von 6 fs [42]. Es dauerte 10 Jahre, bis dieser Rekordwert durch die Kombination eines modengekoppelten Ti:Saphir Lasers mit einer externen Kompressionsstufe unterboten werden konnte [49, 46, 47]. Ein Ansatz bestand darin, den Festkörper als nichtlineares Medium zur spektralen Verbreiterung durch ein Edelgas zu ersetzen, um damit dem Problem der hohen Materialdispersion und der irreversiblen Zerstörung des Mediums bei Einsatz hochenergetischer (mJ) Femtosekundenimpulse eines Ti:Saphir Verstärkersystems zu begegnen [20]. Die relativ schwache optische Nichtlinearität des Edelgases erfordert eine lange Wechselwirkungsstrecke im Medium. Dies wird über eine Hohlfasergeometrie realisiert, die das Licht gebündelt über Strecken von bis zu über einem Meter Länge führt. Mittlerweile werden mit Hilfe dieser Technik Impulsdauern unter 4 fs und Spitzenleistungen von bis zu ca 100 GW erreicht [127, 51, 50, 21, 128].

Im Zuge der Bestrebung diese Technik der Impulskompression zu vereinfachen existieren Ansätze, die Hohlaser eines Edelgaskompressors wegzulassen und den Effekt der Selbstführung intensiver Lichtimpulse in einem Filament zur spektralen Verbreiterung auszunutzen [129]. Höhere Impulsspitzenleistungen könnten durch diese sog. Filamentkompression von Impulsen, deren Energie bisher durch die Hohlaseranordnung beschränkt wurde, erreicht werden.

Das vorliegende Kapitel gliedert sich in zwei Themenabschnitte. Im ersten Unterkapitel wird der Hohlaserkompressor und die statische Dispersionskompensation mittels sog. gechirpter Spiegel behandelt. Experimentell wird die Erzeugung des kürzesten Impulses eines nicht adaptiven Systems zur Dispersionskompensation durch die Kombination aus einem zweistufigen Hohlaserkompressor und speziellen ultrabreitbandigen gechirpten Spiegeln vorgestellt [130]. Im zweiten Unterkapitel wird die Selbstkompression intensiver ultrakurzer optischer Impulse im Filament diskutiert. Experimente in einer Edelgaszelle weisen eine 5-fache Kompression auf und liefern Sub-10-fs-Impulse mit Energien von bis zu 4 mJ [131]. Abschließend werden aktuelle Simulationen vorgestellt, die einen Großteil der experimentellen Beobachtungen bestätigen.

4.1 Der Hohlaserkompressor

4.1.1 Lichtausbreitung in hohlen Wellenleitern

Im Inneren einer Hohlaser breiten sich elektromagnetische Wellen über streifende Reflexionen an der inneren Oberfläche des umgebenden Dielektrikums aus. Die dabei auftretenden Verluste hängen vom Einfallswinkel des Lichtes ab, so dass Moden höherer Ordnung bei genügender Länge der Hohlaser stark gedämpft werden. Die Grundmode ist am wenigsten verlustbehaftet und kann damit über größere Strecken propagieren. Bei optimaler Einkopplung in die Hohlaser ($w_0/a \approx 2/3$, wobei w_0 der Radius des Gaußstrahls am Fasereingang und a der innere Radius der Kapillare ist [132]), gelangt der Hauptanteil der Energie in die fundamentale Hybridmode EH_{11} . Deren Intensitätsprofil kann als Funktion der radialen Koordinate r über eine Besselfunktion nullter Ordnung J_0 in folgender Form dargestellt werden: $I(r) = I_0 J_0^2(2.405 r/a)$, wobei I_0 der Wert der Spitzenintensität ist [133]. Am Ausgang der Hohlaser erhält man einen theoretisch beugungsbegrenzten Strahl mit der Polarisation des Eingangsstrahls.

Verallgemeinernd kann man sagen, dass die Impulsausbreitung in einer gasgefüllten Hohlaser über dieselben Gleichungen beschrieben werden kann, die im Falle optischer Fasern angewendet werden (siehe [38, 134]). Lediglich die Ausbreitungskonstante $\beta(\omega)$ einer Mode enthält nun einen imaginären Anteil $\alpha \propto \lambda^2/a^3$, der die Feldabschwächung beschreibt [133].

Spektrale Impulsverbreiterung in der Hohlaser

Um einen zuverlässigen Betrieb des Hohlaserkompressors zu gewährleisten, sollte gemäß Referenz [38] die auf dem Kerr-Effekt basierende Änderung des Brechungsindex $\Delta n_{\text{Kerr}} = n_2 I_0$ den Beitrag freier Ladungsträger $\Delta n_p \approx \omega_p^2/2\omega_0^2$ weit übertreffen. Kerr-SPM des hochenergetischen Eingangsimpulses in der Edelgasfüllung der Hohlaser führt demnach zur Verbreiterung des ursprünglichen Impulsspektrums bis hin zur Erzeugung eines Superkontinuums, das den gesamten sichtbaren Spektralbereich abdecken kann. Die durch die Hohlasergeometrie bedingte Wellenführung und eine allmähliche Zunahme der nichtlinearen Phasenverschiebung entlang der Hohlaser sind Voraussetzungen für eine räumlich einheitliche spektrale Verbreiterung [8].

Experimentell können zwei verschiedene Parameterbereiche der spektralen Impulsverbreiterung in Hohlfasern unterschieden werden [135]. Bei relativ langen Impulsdauern (140 fs) führt reine Selbstphasenmodulation zu hoch

modulierten Spektren, während kürzere Eingangsimpulse (20 fs) ein wesentlich gleichförmigeres Spektrum erzeugen. Letzteres wird auf einen verstärkten Einfluss der Dispersion des Gases zurückgeführt.

Zur Abschätzung des relativen Einflusses von SPM und GVD werden charakteristische Parameter wie die nichtlineare Länge $L_{\text{nl}} = 1/(\gamma_{\text{SPM}} P_0)$ und die Dispersionslänge $L_{\text{d}} = T_0^2/|\beta_2|$ benutzt, wobei P_0 die Spitzenleistung des Impulses und T_0 die halbe Impulsdauer am Punkt $1/e$ der Spitzenintensität ist [134]. Der nichtlineare Koeffizient γ_{SPM} ist über $\gamma_{\text{SPM}} = n_2 \omega_0 / c_0 A_{\text{eff}}$ definiert, mit $A_{\text{eff}} \approx 0,48 \pi a^2$ als der effektiven Modenfläche [38]. Sobald die tatsächliche Faserlänge die für den jeweiligen Prozess charakteristische Länge übertrifft, spielt dieser eine nicht mehr zu vernachlässigende Rolle bei der Impulspropagation in der Faser. Eine optimale Ausnutzung der Einflüsse von GVD und SPM zur Erzeugung eines spektral verbreiterten und relativ einfach zu komprimierenden, linear gechirpten Impulses gelingt bei einer Faserlänge von $L_{\text{opt}} = \sqrt{6 L_{\text{nl}} L_{\text{d}}}$ [136], die in etwa dem doppelten geometrischen Mittel beider Größen L_{nl} und L_{d} entspricht. Allerdings werden Verlustmechanismen bei dieser Abschätzung einer optimalen Faserlänge nicht mitberücksichtigt.

4.1.2 Dispersionskompensation: gechirpte Spiegel

Über den optischen Kerr-Effekt und Selbstphasenmodulation entstehen neue rotverschobene Spektralkomponenten an der Impulsvorderflanke und blauverschobene an dessen Hinterflanke. Im Zusammenspiel mit der Dispersion des Mediums dominiert ein linearer, positiver Chirp den spektral verbreiterten Impuls am Ausgang der Hohlleiter. Erst eine Kompensation dieses Chirps in einer dispersiven Verzögerungseinheit komprimiert den Impuls im Zeitraum.

Neben den klassischen Techniken der Dispersionskompensation wie dem Gires-Tournois Interferometer (GTI) oder dem Prismen- und Gitterkompressor [126, 137, 124] wurden speziell für die Kompression extrem breitbandiger Impulse neue Verfahren entwickelt, die eine unabhängige Kompensation der verschiedenen Dispersionsordnungen erlauben. Ein Ansatz besteht in der adaptiven Dispersionskompensation über ansteuerbare räumliche Phasenmasken (SLM: „Spatial Light-Modulator“), bestehend aus einem Flüssigkristall-Multielementarray [138] oder über einen deformierbaren Spiegel [139] in der Ebene räumlich aufgespaltener Frequenzkomponenten.

Im Gegensatz dazu stellt ein anderer moderner Ansatz, die Verwendung speziell konstruierter, dispersiver dielektrischer Spiegel, eine statische Alternati-

ve dar [140]. Neben einer maßgeschneiderten Dispersionskompensation über sehr große spektrale Bandbreiten bieten diese sog. gechirpten Spiegel eine Reihe wichtiger Vorteile. So sind sie relativ verlustarm und können auch bei höheren Intensitäten eingesetzt werden. Ein großer Fortschritt liegt ferner in ihrer einfachen Handhabung und der Möglichkeit, kleine kompakte Aufbauten zu realisieren. Allerdings weist das statische Konzept auch Nachteile auf. Ein gechirpter Spiegel ist zur Kompensation eines bestimmten Dispersionsprofils konzipiert und kann nach seiner Fertigstellung nicht mehr, z.B. durch die Einstellung eines Parameters, auf einen anderen Dispersionsverlauf angepasst werden. Auch eine Änderung der Höhe der Dispersion kann nur in diskreten Schritten entsprechend der Anzahl der Reflexionen am Spiegel bewerkstelligt werden. Da im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich dispersive Spiegel bei der Impulskompression zum Einsatz kamen, wird an dieser Stelle detaillierter auf diese Variante der Dispersionskompensation eingegangen.

Die Wirkungsweise eines dispersiven Spiegels ist in Abbildung 4.1 schematisch dargestellt. Der erwünschte dispersive Effekt bei der Reflexion eines Impulses an einem solchen Spiegel wird über die wellenlängenabhängige Eindringtiefe des Lichtes in den dielektrischen Schichtenstapel erzielt. In diesem Bereich des Spiegels wechseln sich Schichten mit hohem und niedrigem Brechungsindex (hier TiO_2 und SiO_2) ab, wobei die Bragg-Wellenlänge eine kontinuierliche Funktion der Schichtnummer ist und in der Regel mit dem Abstand von der Spiegeloberfläche zunimmt. Die Bezeichnung „gechirpter Spiegel“ bezieht sich auf diesen Chirp in der Bragg-Wellenlänge. Zur Erzeugung einer negativen Dispersion müssen kurze Wellenlängen im Vergleich zu langwelligen Komponenten geringere Laufzeiten im Spiegel aufweisen. Aus diesem Grund liegen die Schichtenpaare, die bevorzugt große Wellenlängen reflektieren, tiefer im Spiegel, also näher am Substrat. „Rote“ Spektralkomponenten müssen damit tiefer in den Spiegel eindringen, wohingegen kurze Wellenlängen nahe der Spiegeloberfläche reflektiert werden. Starke räumliche Gradienten im Brechungsindex verursachen jedoch auch unerwünschte dispersive Effekte, die sich im Zeitraum als störende Satellitenimpulse bemerkbar machen [141]. Die stärkste Teilreflexion tritt dabei an der Grenzfläche zur umgebenden Luft auf, wo der Sprung im Brechungsindex am größten ist. Sobald mehrere Reflexionen im Schichtenstapel auftauchen, kommt es zu zusätzlichen interferometrischen Effekten, die in ihrer Auswirkung den dispersiven Eigenschaften eines Gires-Tournois-Interferometers (GTI, [142]) gleichen. Im Frequenzraum wirken sich die auftretenden Satellitenimpulse in Form einer entlang der Frequenzachse periodisch oszillierenden spektralen Phase aus.

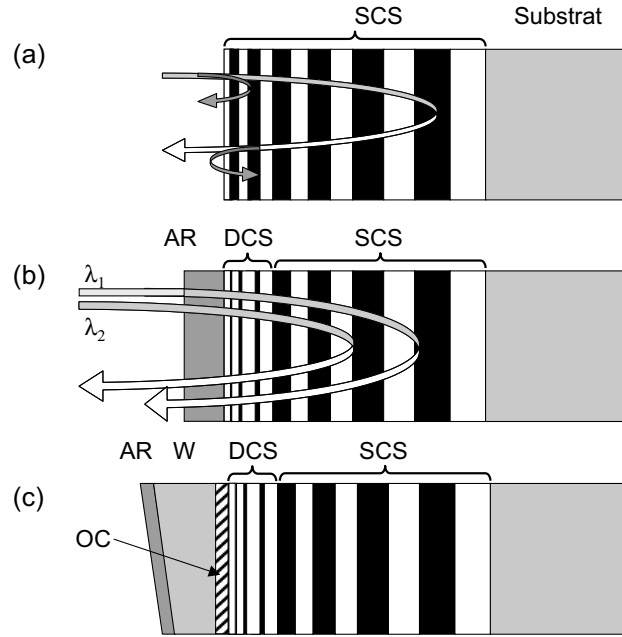


Abbildung 4.1: Verschiedene Generationen gechirpter Spiegel: a) Einfach gechirpter Spiegel, bestehend aus einem einzelnen Schichtenstapel mit gechirpter Schichtendicke (SCS: „Single-Chirped Stack“), deponiert auf einem Trägersubstrat. Die Pfeile veranschaulichen den optischen Weg einer bestimmten Wellenlänge. Die zwei intensivsten Teilreflexionen (4%) treten am Indexsprung zwischen dem Schichtenstapel und der umgebenden Luft auf. b) Doppelt gechirpter Spiegel, bestehend aus einem zweifach gechirpten Schichtenstapel (DCS: „Double-Chirped Stack“) und einer Antireflexbeschichtung (AR) zur adiabatischen Impedanzanpassung an die Umgebung. Zwei Pfeile symbolisieren die Abhängigkeit der Eindringtiefe von der Wellenlänge anhand zweier verschiedener Fourierkomponenten des einfallenden Impulses. c) Die BASIC-Struktur ermöglicht eine Impedanzanpassung über einen breiteren Spektralbereich (W: keilförmiges Substrat mit angepasstem Brechungsindex, OC: optischer Kitt).

Zur Unterdrückung störender GTI-Effekte wurden doppelt gechirpte Schichtenstapel entwickelt, welche die in der Schichtenstruktur entstehenden Teilreflexionen durch eine adiabatische Impedanzanpassung reduzieren [siehe Abbildung 4.1 b)]. Hierzu muss die Periodizität in der Variation des Brechungsindex langsam mit der Zahl der Schichten aufgebaut werden [143, 144]. Zusätzlich reduziert eine Anti-Reflex-Beschichtung (AR) störende Oberflächenreflexionen. Da jedoch AR-Beschichtungen hoher Qualität nicht beliebig breitbandig hergestellt werden können, sind doppelt gechirpte Spiegel (DCMs) auf eine maximale Bandbreite von ca 300 nm bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm begrenzt [145].

Zur Dispersionskompensation über einen ausgedehnten Spektralbereich wurden sog. „Back-Side Coated Mirrors“ (BASIC) entwickelt [146]. Die zugrundeliegende Idee besteht darin, das umgebende Medium Luft durch ein Material zu ersetzen, das den gleichen Brechungsindex wie eine der dielektrischen Schichten aufweist. Das Problem der störenden Frontreflexionen wird dadurch auf die Grenzfläche zwischen diesem abdeckenden Substrat und der Luft verlagert. Poliert man das aufgebrachte Substrat unter einem kleinen Winkel von ca 2° auf die minimal mögliche Dicke herunter, erhält man eine dünne keilförmige Abdeckung des doppelt gechirpten Stapelsystems. Oberflächenreflexe von diesem Keil laufen nun nicht mehr kollinear zum reflektierten Strahl, wodurch eine Interferenz effektiv verhindert wird. Abbildung 4.1 c) zeigt eine solche BASIC-Struktur, die auch unter der Bezeichnung „Tilted Front-Interface Chirped Mirror“ Anwendung gefunden hat [147].

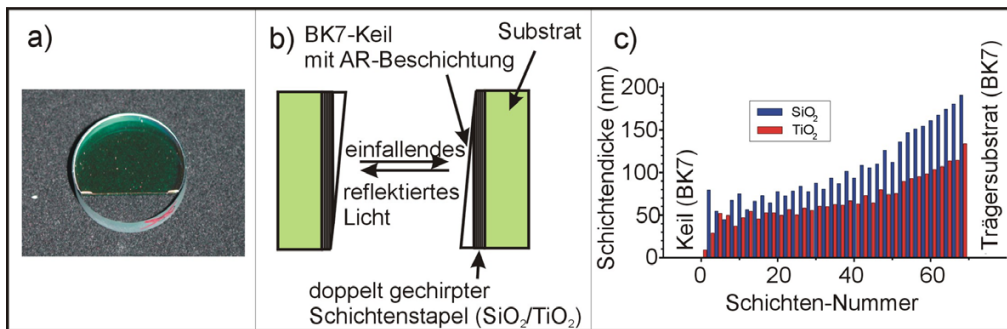


Abbildung 4.2: BASIC-Design eines gechirpten Spiegels zur Dispersionskompensation über eine optische Oktave. a) Fotografie eines BASIC. Der Poliervorgang unter einem Winkel von 2° zur Keilung des Decksubstrates geht im unteren Teil des Spiegels bis in das Trägersubstrat. b) Seitenansicht eines BASIC-Spiegelpaars so, wie es zur Dispersionskompensation angeordnet wird. c) optimiertes Schichten-design. Die Nummerierung der Schichten beginnt an der Grenze zum keilförmigen Decksubstrat. Die gesamte Dicke des Schichtenstapels beträgt $5,9 \mu\text{m}$.

Die zusätzliche AR-Beschichtung reduziert die Einkopplungsverluste in den Spiegel. In diesem Fall kann eine spektral breitbandigere AR-Beschichtung realisiert werden, da die hohen Qualitätsanforderungen bezüglich der Restreflektivität nicht mehr in gleichem Maße wie bei den herkömmlichen DCMs erfüllt sein müssen. Ein Nachteil dieses Konzepts liegt in der durch das keilförmige Substrat zusätzlich eingeführten Materialdispersion, die durch die negative Dispersion des Schichtenstapels überkompensiert werden muss.

Die Abbildungen 4.2 und 4.3 zeigen die Eigenschaften des BASIC-Designs,

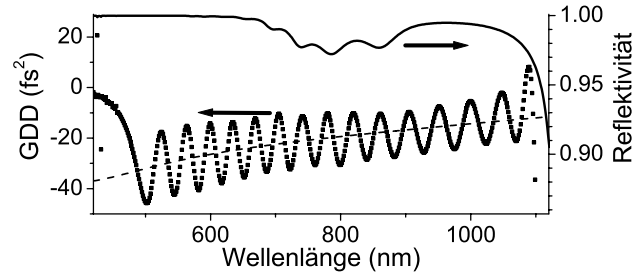


Abbildung 4.3: Berechnete Reflektivität und Gruppenlaufzeitdispersion (GDD) des BASIC-Designs der Abbildung 4.2 c) aus Referenzen [148, 130]. Der in der Optimierung angestrebte Dispersionsverlauf ist als gestrichelte Kurve eingezeichnet. Es ist zu beachten, dass der positive Dispersionsanteil der keilförmigen Abdeckung noch nicht berücksichtigt ist.

das im Zuge dieser Arbeit zur Dispersionskompensation eines oktavenbreiten Hohlaser-Superkontinuums eingesetzt wurde. Der verwendbare Wellenlängenbereich dieses Spiegeldesigns erstreckt sich von 480 nm bis 1050 nm und übertrifft damit eine optische Oktave. In diesem Bereich liegt die Reflektivität über 97% und der RMS-Wert der Dispersionsoszillationen bei 12 fs^2 pro Reflexion. Bei einer Wellenlänge von 800 nm liefert das Design eine negative Dispersion von -20 fs^2 . Im zentralen Bereich des Spiegels, in der Nähe der Keilspitze, beträgt die Dicke des Oberflächensubstrates ca $100 \mu\text{m}$. Dieses Material fügt einen zusätzlichen Anteil positiver Dispersion von 8 fs^2 pro Reflexion hinzu. Eine optimale Kompression unter Ausnutzung der kompletten spektralen Bandbreite dieser gechirpten Spiegel würde eine Impulsdauer von ca 3 fs erzeugen.

4.1.3 Erzeugung des kürzesten Impulses

Zur Erzeugung ultrakurzer verstärkter Impulse im sichtbaren Spektralbereich wurde ein zweistufiger Hohlaserkompressor, ähnlich dem in Referenz [148] beschriebenen, aufgebaut. Ein Schema dieses Kompressors ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Der Vorteil eines solchen zweistufigen Hohlaserkompressors gegenüber einer einzelnen Hohlaser liegt in einer stärkeren spektralen Verbreiterung [149]. Auch wird auf diese Weise mehr Energie in die gewöhnlich intensitätsarmen kurzwelligen Bereiche des Superkontinuums transferiert.

Im Folgenden werden die Durchführung der zweistufigen Impulskompression und die verwendeten experimentellen Parameter beschrieben bzw. diskutiert: Ein kommerzielles Ti:Saphir Verstärkersystems (Femtolasers Femtopower Compact Pro) mit einer Repetitionsrate von 1 kHz liefert Ausgangsim-

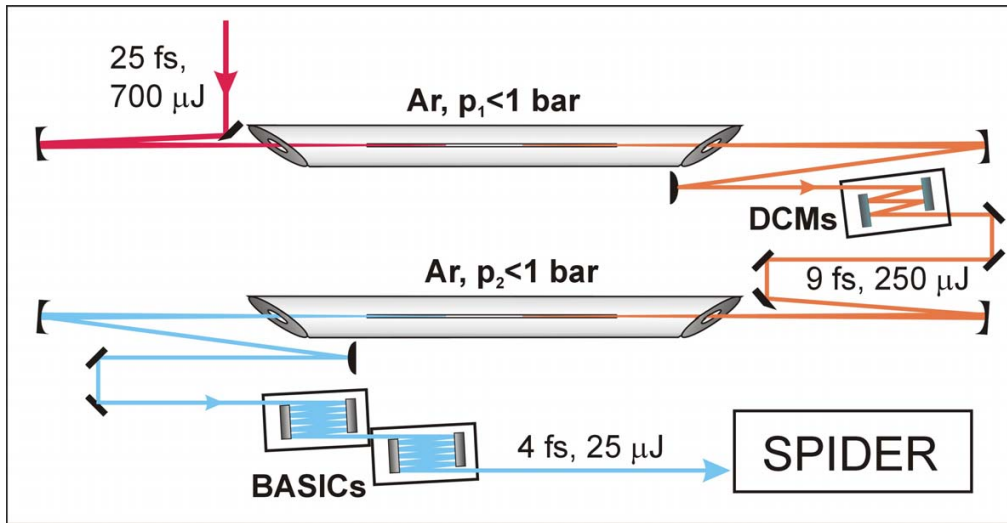


Abbildung 4.4: Schema eines zweistufigen Hohlfaserkompressors. Impulse eines Ti:Saphir Verstärkersystems werden in zwei aufeinander folgende, mit Argon (Ar) gefüllte Hohlfasern eingekoppelt ($p_1 = 500$ mbar, $p_2 = 350$ mbar). Nach jedem Schritt der spektralen Verbreiterung durch eine Hohlfaserstufe wird der Impuls über gechirpte Spiegel komprimiert (DCMs: doppelt gechirpte Spiegel, BASICS: „Back-Side Coated Chirped Mirrors“).

pulse mit einer Impulsdauer von 25 fs und einer Energie von $700 \mu\text{J}$. Mit Hilfe eines konkaven dielektrischen Spiegels werden diese Impulse in die erste 50 cm lange Hohlfaser eingekoppelt. Die Spiegelbrennweite von $f = 1$ m wurde für die höchste Einkopplungseffizienz in die EH_{11} -Mode der Hohlfaser gewählt. Dies bedingt einen Radius des Gauß-Strahls von $w = 80 \mu\text{m}$ am Eingang der Hohlfaser, deren innerer Durchmesser $250 \mu\text{m}$ beträgt. Durch die Aufhängung der Hohlfaser in einer rohrförmigen Vakuumkammer lässt sich der Druck der Edelgasfüllung in einem Bereich zwischen ca 20 mbar und 1 bar frei einstellen. Eine optimale spektrale Verbreiterung des Impulses liegt hier bei einem Argondruck von $p_1 = 500$ mbar vor. Die Kammer wird von zwei 0,5 mm dicken Glasfenstern in Brewster-Anordnung abgeschlossen. Der Eingangsimpuls mit einer Spitzenleistung von 20 GW und einer Energie von $650 \mu\text{J}$ vor der ersten Hohlfaser ist in Abbildung 4.5 a) und b) zu sehen. Hinter der ersten Hohlfaser wird der Strahl rein reflektiv über Silberspiegel rekollimiert und geführt. Vier Reflexionen an kommerziellen doppelt gechirpten Spiegeln (DCMs) komprimieren den Impuls auf 14 fs. Jede Reflexion bewirkt eine negative Dispersion von -60 fs^2 bei einer Wellenlänge von 800 nm. Die damit zur Verfügung stehende Nettodispersion von -240 fs^2 kompensiert die in der ersten Druckkammer eingeführte Dispersion (45 fs^2 [130]),

den 3,5 m langen Luftweg (70 fs^2) und das Eintrittsfenster in die zweite Kammer (25 fs^2). Die ebenfalls kompensierte nichtlineare Dispersion von maximal 100 fs^2 wird dem Einfluss der Selbstphasenmodulation im Argongas der ersten Kammer zugeordnet. Der komprimierte Impuls ist durch die gechirpten Spiegel leicht überkompensiert, erhält also einen negativen Chirp. Durch dispersive Einflüsse hinter den DCMs, verursacht durch den weiteren Luftweg und das Eintrittsfensters der zweiten Kammer, wird der Impuls dann vor der zweiten Hohlaser auf eine Dauer von 9 fs komprimiert. Die Impulsenergie beträgt hier noch $250 \mu\text{J}$. Unter optimalen Bedingungen und einer Anpassung der Dispersion im Strahlengang können mit der ersten Kompressorstufe auch Impulsdauern unter 6 fs bei Impulsenergien von $300 \mu\text{J}$ erreicht werden. Ein solcher Impuls ist in Abbildung 4.5 d) zu sehen. Die Impulsdauer hinter der ersten Kompressorstufe wird hauptsächlich durch die spektrale Bandbreite der DCMs von 250 nm (Wellenlängenbereich: 650 nm bis 900 nm) limitiert.

In der zweiten Stufe wird ein Superkontinuum erzeugt, das mehr als eine optische Oktave abdeckt. Abgesehen von der Verwendung einer etwas längeren Hohlaser von 60 cm und einem angepassten Argondruck von 350 mbar gleicht der Aufbau der zweiten Kompressorstufe dem der ersten. Einkopplung in die Hohlaser und Rekollimation am Ausgang erfolgt hier mittels konkaver Silberspiegel mit einer Brennweite von $f = 1 \text{ m}$. Trotz der Transmissionsverluste von ca 50% durch die erste Kompressorstufe deuten Anzeichen einer Plasmabildung im Fokusbereich vor der zweiten Hohlaser auf eine effektive Erhöhung der Spitzenleistung. Am Ausgang der zweiten Hohlaser beträgt die Energie des Superkontinuumimpulses noch bis zu $150 \mu\text{J}$. Die Kompensation der Dispersion erfolgt hier über 24 Reflexionen an gechirpten Spiegeln des BASIC-Typs [148], die den Spektralbereich zwischen 480 nm und 1050 nm unterstützen. Spektralanteile des Superkontinuums mit Wellenlängen unter 480 nm werden nicht mehr reflektiert, was sich im Impulsspektrum widerspiegelt [siehe Abbildung 4.5 e)]. Rechnet man mit einer Dispersion von ca -10 fs^2 pro Reflexion, entspricht die zu kompensierende Nettodispersion dem Wert von 240 fs^2 , der bereits auch in der ersten Stufe vorlag. Hinter dieser zweiten Kompression liegt die Impulsenergie noch im Bereich zwischen $20 \mu\text{J}$ und $30 \mu\text{J}$.

In Abbildung 4.5 f) ist ein typischer Impuls einer gelungenen Superkontinuumskompression des zweistufigen Hohlaserbaus zu sehen. Mit einer Dauer von 3,8 fs und einem Satellitenanteil, der unter 25% der Impulsspitzenleistung liegt, ist dieser optische Impuls der kürzeste im sichtbaren und nahen infraroten Wellenlängenbereich, der bisher mit rein statischer, d.h. nicht adaptiver Dispersionskompensation über gechirpte Spiegel erzeugt werden konnte [130].

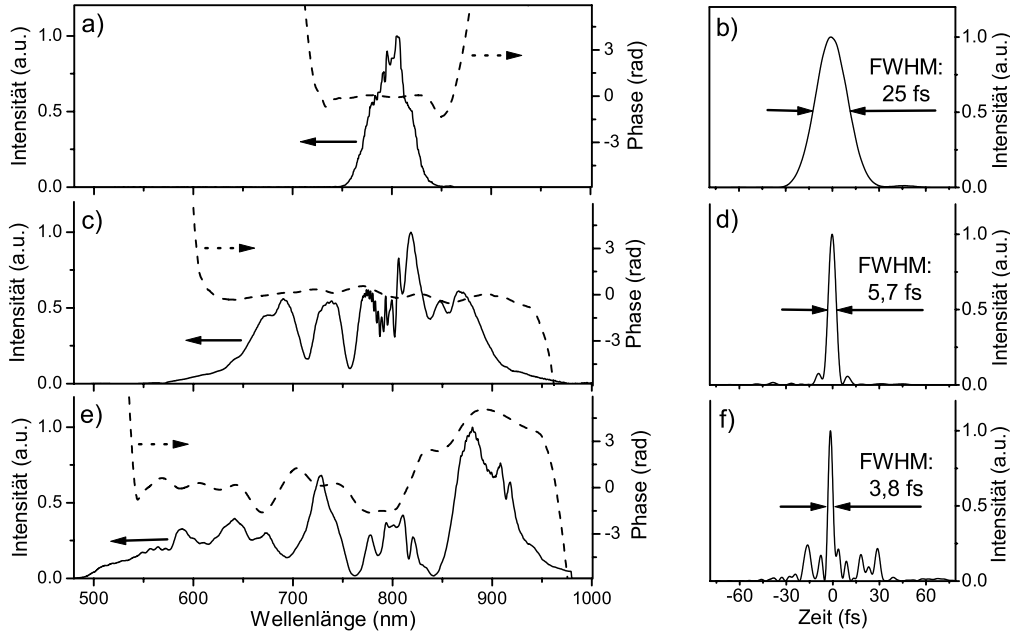


Abbildung 4.5: SPIDER-Messungen der kürzesten Impulse, die mit dem in Abbildung 4.4 dargestellten Hohlfaserkompressor und einer Dispersionskompensation über gechirpte Spiegel erzeugt werden konnten. Linke Spalte [a), c) und e)]: Intensitätsverlauf (durchgezogene Linie) und Phase (gestrichelt) des jeweiligen Impulses im Frequenzraum. Rechte Spalte [b), d) und f)]: zeitlicher Intensitätsverlauf des Impulses. a) und b) Impuls des Ti:Saphir Verstärkers, wie er am Eingang der ersten Hohlfaser vorliegt. c) und d) kürzester Impuls, der hinter der ersten Kompressorstufe gemessen werden konnte. Die Impulsenergie beträgt $300 \mu\text{J}$. e) und f) Kürzester Impuls, der durch rein statische Dispersionskompensation über BASIC gechirpte Spiegel hinter der zweiten Hohlfaser auf eine FWHM-Dauer von 3,8 fs (Fourierlimit: 3,2 fs) komprimiert wurde. Die Impulsenergie beträgt $20 \mu\text{J}$.

Die Halbwertsdauer entspricht lediglich 1,5 Feldperioden der Trägerfrequenz. Eine stärkere Kompression auf das Fourierlimit des Superkontinuums von 3,2 fs wird durch die starke Phasenstörung im Bereich der Pumpwellenlänge (800 nm) verhindert. Diese Störung in der spektralen Phase ist auch die Ursache für den relativ starken Satellitenimpulsgehalt, der jedoch typisch für spektral stark modulierte Superkontinuumsimpulse ist. Ein Ansatz zur Erklärung dieser Phasenstörung wird in den folgenden Abschnitten gegeben.

4.1.4 Erkenntnisse über den Prozess der Hohlfaserkompression

Die Parameter des Kompressors der ersten Stufe führen zu einer Intensität von $I_0 = 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ im Fokusbereich der Einkopplung in die Hohlfaser. In der Hohlfaser ist die Anfangsintensität um eine Größenordnung schwächer. Unter der Annahme einer Schwellenintensität von $ca\ 5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bar für den Beginn von Multiphotonenionisation im Edelgas [150, 151] ist von einer Plasmaerzeugung im Fokusbereich auszugehen, während die Intensität im Inneren der Hohlfaser unter diesem Schwellenwert liegt. In der Tat kann bei Drücken im Bereich von 500 mbar bereits eine bläuliche Lumineszenz auf einer Länge von $ca\ 2 \text{ cm}$ im Bereich des Laserfokus vor der Hohlfaser beobachtet werden, im Inneren derselben jedoch nicht.

Bei einer Skalierung der Superkontinuumserzeugung zu höheren Impulsenergien muss neben der Vermeidung eines Plasmas in der Hohlfaser und der damit verbundenen Entstehung freier Ladungsträger auch beachtet werden, dass die Spitzenleistung des Lasers unter der kritischen Leistung P_{crit} der Selbstfokussierung bleibt, da es sonst zu einer verstärkten Kopplung zwischen der fundamentalen Fasermode und Moden höherer Ordnung kommt. Im vorliegenden Fall kann diese Leistung über Gleichung (2.25) zu $P_{\text{crit}} = 23 \text{ GW}$ abgeschätzt werden. Damit arbeitet der Hohlfaserkompressor bereits an der Grenze zur Selbstfokussierung und ist somit im verwendeten Parameterbereich bereits am oberen Limit der einsetzbaren Spitzenleistung.

Eine Berechnung der charakteristischen Größen der Lichtführung im verwendeten Hohlfaserkompressor verdeutlicht, dass SPM gegenüber den dispersiven Effekten deutlich überwiegt. Über eine Abschätzung des nichtlinearen Koeffizienten $\gamma_{\text{SPM}} \approx 10^{-19} (\text{W m})^{-1}$ ergibt sich eine nichtlineare Länge von $L_{\text{nl}} = 5 \text{ cm}$ [134], die deutlich kürzer als die verwendete Hohlfaserlänge $L = 50 \text{ cm}$ ausfällt. Im Vergleich dazu sind die dispersiven Effekte relativ schwach. Bei atmosphärischem Druck und einer Wellenlänge von 800 nm beträgt die Dispersion zweiter Ordnung von Argon $\beta_2 = 19 \text{ fs}^2/\text{m}$ und die dritter Ordnung $\beta_3 = 9 \text{ fs}^3/\text{m}$ [130]. Die Dispersion der Wellenleitung ($\beta_2 = -8,5 \text{ fs}^2/\text{m}$, $\beta_3 = 11 \text{ fs}^3/\text{m}$ [152]) kompensiert einen Teil der zweiten Ordnung Dispersion, vergrößert jedoch den Betrag der dritten Ordnung. Der gesamte dispersive Einfluss einer Kompressorstufe beläuft sich dann auf einen Wert von 45 fs^2 , was die Beiträge beider Glasfenster und den 125 cm langen Weg innerhalb der Argongaszelle mit einschließt. Ausgehend vom verwendeten Druckbereich unter einer Atmosphäre führt eine Abschätzung der dispersiven Länge zu $L_d > 90 \text{ m}$. Damit sind die Einflüsse dispersiver Impuls-

Edelgas	$\eta_2 = n_2/p$ in $10^{-20} \text{ cm}^2/\text{W bar}$	U_i in eV
Helium, He	0,29	24,6
Neon, Ne	0,74	21,6
Argon, Ar	9,8	15,8
Krypton, Kr	27,8	13,9
Xenon, Xe	45,2	12,1

Tabelle 4.1: Tabelle der Werte des nichtlinearen Brechungsindex n_2 einzelner Edelgase nach [153, 135, 132, 38, 154] sowie deren Ionisationspotentiale U_i .

streckung gegenüber den nichtlinearen Effekten im Argongas vernachlässigbar. Diese Aussage gilt auch noch für die zweite Verstärkerstufe mit den hier verwendeten kürzeren Impulsen. Aus praktischen Gründen und um eine hinreichend hohe Transmission ($> 50\%$) durch eine Hohlfaserstufe zu erzielen, wurde die optimale Faserlänge L_{opt} weit unterschritten.

4.1.5 Grenzen der Hohlfaserkompression

Eine Superkontinuumserzeugung mit Eingangsimpulsen geringer Spitzenleistung ($< 5 \text{ GW}$) kann über eine Reduzierung des Innendurchmessers ($< 150 \mu\text{m}$) der Hohlfaser und der Verwendung schwerer Edelgase wie Krypton oder Xenon, die ein größeres n_2 besitzen (siehe Tabelle 4.1), in einer Überdruckkammer realisiert werden. Die Grenze des Verfahrens der Hohlfaserkompression in Richtung höherer Impulsspitzenleistungen wird vorwiegend über die kritische Leistung P_{crit} [siehe Gleichung (2.25)] festgelegt. Durch eine Erhöhung der Eingangsleistung werden Moden höherer Ordnung verstärkt in der Hohlfaser angeregt. Aufgrund deren unterschiedlicher Gruppenlaufzeit „zerfließt“ der Impuls zeitlich, was eine rasche Abnahme der Spitzenleistung zur Folge hat. Bei Annäherung an die kritische Leistung bewirkt dieser Effekt, dass der für eine erfolgreiche Dispersionskompensation notwendige lineare Chirp nur noch in einer kleinen Region nahe der Impulsspitze vorhanden ist und es im restlichen Bereich zu einer z.T. stark oszillierenden zeitlichen Phase kommt [155]. Eine Möglichkeit der Skalierung zu höheren Spitzenleistungen besteht darin, den nichtlinearen Brechungsindex n_2 abzusenken, indem man einen niedrigeren Edelgasdruck ($p < 300 \text{ mbar}$) oder leichtere Edelgase wie Neon verwendet. Dies würde eine Verdopplung der Eingangsimpulsenergie auf ca $1,5 \text{ mJ}$ ermöglichen. Um Multiphotonenionisation im Inneren der Faser zu vermeiden, muss man dann zu größeren ($> 300 \mu\text{m}$) Innendurch-

messern und einer längeren Brennweite ($> 2\text{ m}$) zur Einkopplung übergehen. Die damit verbundene Vergrößerung der effektiven Modenfläche A_{eff} erhöht den Wert der nichtlinearen Länge L_{nl} . Eine äquivalente spektrale Verbreiterung ist dann nur noch mit längeren Hohlfasern zu bewerkstelligen, die bei Ausdehnungen über einem Meter unpraktikabel werden und erhöhte Verluste aufweisen. Auch die Zerstörung des Glasmantels der Hohlfaser wird bei Impulsenergien $> 1\text{ mJ}$ und Repetitionsraten von 1 kHz immer wahrscheinlicher.

Um die Ausbildung eines Plasmas im Inneren der Hohlfaser zu verhindern, kommen in der ersten Kompressorstufe häufig sog. „getaperte“ Fasern zum Einsatz, deren Innendurchmesser sich in Richtung Faserausgang kontinuierlich verjüngt [50]. Obwohl theoretische Abschätzungen zur Skalierung der klassischen Hohlfaserkompression in den Terawatt-Bereich seit längerem existieren [132], gelang erst kürzlich ein erster experimenteller Schritt in diese Richtung. Über die aufwändige Erzeugung eines Druckgradienten im Inneren einer über 2 m langen Hohlfaser großen Durchmessers konnte die Kompression von Impulsen mit Energien von bis zu 5 mJ bei einer Repetitionsrate von 10 Hz demonstriert werden [128].

Ein alternativer Weg der Kompression von Impulsen mit Energien $> 1\text{ mJ}$, der die Einschränkungen der Hohlfasergeometrie umgeht, liegt in der spektralen Verbreiterung während der Selbstführung des Impulses in einem Filament unter Edelgasatmosphäre [129]. Hierzu wird im folgenden Abschnitt ein Experiment zur Selbstkompression eines Impulses vorgestellt, in dem neben der Hohlfaser auch der Schritt einer Dispersionskompensation eingespart werden konnte [131].

4.2 Selbstkompression im Filament

Im Energiebereich oberhalb von 1 mJ wird die Umsetzung der Impulskompression mit der Hohlfasertechnik schwieriger, da der Aufwand, eine Ionisation des Edelgases und Plasmabildung zu verhindern, stark zunimmt. Dies ist aber die Voraussetzung, um im kontrollierbaren Regime der spektralen Verbreiterung über den auf gebundenen Elektronen beruhenden Prozess der Selbstphasenmodulation arbeiten zu können. Das Auftreten eines Plasmas führt zusätzliche nichtlineare Effekte ein, die auf einer durch freie Ladungsträger verursachten Änderung des Brechungsindex beruhen. In den allermeisten Fällen sind die resultierenden Impulse dann nicht mehr in der gewohnten Qualität komprimierbar. So treten in der Umgebung der Trägerfrequenz des Pumpimpulses vermehrt Unstetigkeiten (Stufen und Knicke) in der spek-

tralen Phase auf [siehe Abbildungen 3.9 b) und 4.5 e) sowie Referenz [50]], die den Satellitenimpulsanteil erhöhen oder sogar zu Doppelimpulsen führen.

Eine Alternative für die spektrale Verbreiterung hochenergetischer Impulse ($> 1 \text{ mJ}$) stellt die Erzeugung eines Weißlichtfilaments dar, in dem der Effekt der Selbstführung intensiver Lichtimpulse im nichtlinearen Medium eine Hohlaser zur Wellenleitung überflüssig werden lässt [129]. In diesem Fall muss ein Parameterbereich gefunden werden, in dem die oben genannten, schwer zu kompensierenden Phasenstörungen nicht auftreten. Die Ausbildung eines Filaments, erzeugt durch Femtosekundenimpulse, wird über das Wechselspiel zwischen der durch den Kerr-Effekt hervorgerufenen Selbstfokussierung des Laserstrahls und der durch das entstehende Plasma erzeugten Defokussierung erklärt [156, 157, 158]. In einem Filament heben sich diese beiden Prozesse entweder in ihrer Wirkung auf oder wechseln sich gegenseitig ab, wodurch das Licht in einem engen Kanal mit einem Durchmesser von wenigen $100 \mu\text{m}$ eingeschlossen ist und so über lange Distanzen bis über hunderte von Metern geführt werden kann [159].

Ein weiterer interessanter Aspekt dieser Art der Lichtführung ist die Ausbildung eines kurzen Impulses, ohne dass eine zusätzliche Dispersionskompensation nach dem Prozess der spektralen Verbreiterung nötig wird. Dieses Phänomen der Selbstkompression eines optischen Impulses im Filament wurde bereits theoretisch vorhergesagt [36, 160, 161, 162, 129, 163]. Experimentelle Beispiele für diesen Effekt sind jedoch rar. So konnte eine Selbstkompression auf die Hälfte der Eingangsimpulsdauer von ca. 90 fs im Bereich der Selbstfokussierung am Anfang eines Filaments in Luft festgestellt werden [164]. Auch in einer Hohlasergeometrie wurde bereits eine Selbstkompression von 30 fs auf 13 fs beobachtet [165], zu deren Erklärung neben Plasmaeffekten auch die Lichtausbreitung in einem hohlen Wellenleiter herangezogen wurde.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Parameterbereich gefunden, in dem Millijoule-Impulse mit einer Dauer von 45 fs in einem 50 cm langen Filament unter Edelgasatmosphäre auf unter 10 fs komprimiert werden [131]. Damit können Spitzenleistungen von über 100 GW bereitgestellt werden, die nur unter erheblichem Aufwand und reduzierter Repetitionsrate durch Hohlasergeometrien erreichbar sind [128].

4.2.1 Grundlagen zur Filamentation und Selbstkompression

Unter dem Einfluss des Kerr-Effekts wird ein Laserstrahl überkritischer Leistung ($>P_{\text{crit}}$) so lange selbstfokussiert, bis dessen Durchmesser die Größenordnung der Laserwellenlänge erreicht und Beugung einen weiteren Strahlkollaps verhindert. Bei der Ausbreitung von Femtosekundenimpulsen in einem realen Kerr-Medium ist jedoch bereits bei Strahldurchmessern $\geq 100 \mu\text{m}$ eine Intensität erreicht, bei der Elektronen durch beginnende Multiphotonenionisation freigesetzt werden. Im Edelgas kennzeichnet der Intensitätsbereich $10^{13} \text{ W/cm}^2 < I < 10^{15} \text{ W/cm}^2$ sowohl das Einsetzen von Multiphotonenionisation als auch die Grenze einer störungstheoretischen Behandlung des nichtlinearen Beitrags zur Polarisierung [8]. In diesem Regime nehmen die Beiträge freier Elektronen und induzierter atomarer Dipole zum nichtlinearen Brechungsindex vergleichbare Werte an ($\Delta n_{\text{Kerr}} \approx \Delta n_p$), wodurch Kerr-induzierte Selbstfokussierung und Plasma-Defokussierung eine Selbstführung des Femtosekundenimpulses in einem Filamentkanal bewirken. Aufgrund der hohen Intensität in diesem ausgedehnten Propagationsabschnitt kommt es über SPM zu einer spektralen Impulsverbreiterung bis hin zur Weißlichterzeugung. Plasmabildung entlang des Filamentkanals und seitliche Lichtemission reduzieren die Energie des Laserimpulses. Sobald dessen Leistung unter den Wert P_{crit} abgesunken ist, divergiert der Strahl und das Filament bricht zusammen. Eine Erhöhung der Laserleistung auf $P > 5P_{\text{crit}}$ lässt das Einzelfilament in Multifilamente aufbrechen. Dieser Prozess wird durch räumliche Inhomogenitäten im Strahlprofil begünstigt [156]. Basierend auf unterschiedlichen Beobachtungen existieren drei Modellbilder für die qualitative Beschreibung des Filamentationsprozesses. Diese werden im Folgenden kurz vorgestellt.

Das Modell der Selbstführung

Dieses Modell geht von einer quasistabilen, verlustbehafteten Lichtführung ähnlich der in Hohlfasern aus. Ein dynamisches Gleichgewicht zwischen optischem Kerr-Effekt und Plasmadefokussierung lässt einen Kernbereich mit schwach ionisiertem Gas (nur ca. 1% der Atome sind einfach ionisiert), umgeben von einem Mantel höheren Brechungsindex aufgrund des hier dominierenden optischen Kerr-Effekts, entstehen [158]. Da Multiphotonenabsorption mit einer hohen Potenz (entsprechend der Photonenzahl) der optischen Intensität skaliert, bildet sich eine scharfe Grenze zwischen beiden Bereichen aus. Streifende Reflexionen an diesem durch einen Indexsprung gekennzeichneten Übergang ermöglichen eine verlustbehaftete Propagation von Moden

über ausgedehnte Strecken. Ein spezieller Verlustmechanismus ist die kegelförmige Emission, die in Vorwärtsrichtung beobachtet werden kann [166]. Ein Teil des geführten Lichtes entkommt dem Kernbereich über die wellenlängenabhängige Lichtbrechung an der Indexstufe. In den zugrundeliegenden Experimenten in Luft betrug die maximale Änderung des Brechungsindex durch die nichtlinearen Beiträge $|\Delta n| \approx 10^{-5}$. Etwa 10% der Eingangsenergie wurde im Filament geführt.

Das Modell des „Moving Focus“

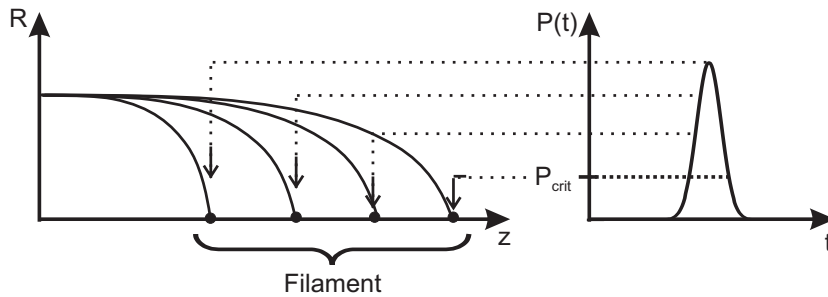


Abbildung 4.6: Schema zur Erklärung der Filamentation über das Konzept des „Moving Focus“. Aufgetragen ist der Strahlradius R entlang der Ausbreitungsrichtung z des ultrakurzen Impulses $P(t)$. Oberhalb der kritischen Leistung $P_{\text{crit}}(t)$ weisen die aufeinander folgenden zeitlichen Abschnitte eines ultrakurzen Impulses verschieden lange nichtlineare Brennweiten auf.

Im einfachsten Bild eines instantanen Kerr-Effektes fokussieren sich verschiedene Zeitausschnitte des Impulses, die unterschiedliche Intensitäten aufweisen auf unterschiedliche Punkte entlang der Strahlrichtung selbst [157] (siehe Abbildung 4.6). In diesem Modell ist ein Filament lediglich der Bereich, in dem diese verschiedenen aufeinanderfolgenden Foki liegen. Dessen Ausdehnung wird durch die Beugung begrenzt und entspricht der Rayleigh-Länge $z_0 = \frac{1}{2}kw_0^2$ mit dem Strahlradius w_0 bei $1/e$ der Spitzenleistung und ist damit unabhängig von der Impulsenergie. Experimentelle Beobachtungen bezüglich der Position des Filamentanfangs und der Filamentlänge unterstützen dieses Bild. So rückt der Filamentanfang bei Erhöhung der Spitzenleistung näher an die Laserquelle. Sobald defokussierende Plasmaeffekte an der Impulshinterflanke einsetzen, ist dieses Modell auf den vorderen Teil des Impulses beschränkt.

Das Modell der dynamischen räumlichen Wiederauffüllung

Basierend auf ersten numerischen Simulationen der Propagation von Femtosekundenimpulsen in Luft, kann das Modell des sich verschiebenden Fokus um den Effekt einer dynamischen räumlichen Wiederauffüllung des propagierenden Impulses vervollständigt werden (DSR: „Dynamic spatial replenishment“ [167]). Die theoretischen Untersuchungen bei einer Impulsleistung von $P \approx 5P_{\text{crit}}$ liefern im Wesentlichen ein Filament mit einer Ausdehnung entsprechend der Rayleigh-Länge und einer Intensitätssenke in der Mitte des Filaments. Verfolgt man das raum-zeitliche Impulsprofil während der Propagation im ionisierten Gas, zeigt sich, dass sich der Eingangsimpuls im Anfangsstadium der Selbstfokussierung so lange zeitlich komprimiert, bis dieser Effekt durch die Dispersion aufgehalten wird. Das entstehende Plasma defokussiert vorwiegend die hintere Flanke des Impulses, deren Leistung nun in einem Ring um die Strahlachse geführt wird. Der im Außenbereich um das Filamentzentrum dominierende Kerr-Effekt refokussiert diesen Impulsanteil auf die Strahlachse, was zu einem Doppelimpuls über weite Bereiche des Filaments führt. Im Verlauf der Propagation wird Energie vom vorderen Impuls in den hinteren transferiert.

Sämtliche der hier vorgestellten Modelle zur Filamentation beschreiben lediglich Teilaspekte dieses Phänomens. So trifft das Bild des sich verschiebenden Fokus nur für den Startbereich eines Filaments zu und kann nicht die Selbstführung des Lichtes über den linearen Fokusbereich eines konvergierenden Strahls hinaus beschreiben [158]. Aber auch das DSR-Modell sagt im Wesentlichen Filamentausdehnungen über lediglich 1 bis 2 Rayleigh-Längen voraus, wohingegen Selbstführung über mehr als die zehnfache Rayleigh-Länge beobachtet wurde. Die im DSR-Bild simulierte oszillatorische Intensitätsstruktur entlang des Filaments ist auch kein stets zu beobachtender Effekt. Vielmehr können auch in Ausbreitungsrichtung räumlich getrennt Multifilamente auftreten. Neuere Simulationsrechnungen zeigen jedoch auch Fälle auf, in denen ein einzelner Impuls ohne Intensitätsoszillation über mehr als 15 Rayleigh-Länge selbstführend im Edelgas propagiert und sich dabei zeitlich kontrahiert [160]. Ein solcher Impuls kann sich demnach im Bereich der Vorderflanke des Eingangsimpulses ausbilden, wenn die Impulshinterflanke durch Plasmaeffekte kontinuierlich abgeschwächt wird. Während des anfänglichen Prozesses der Selbstfokussierung konvergiert der Impuls lateral bis zu einem stationären Zustand. Die Ausbildung eines solchen „Gas-induzierten Soliton“, das häufig auch als „Light Bullet“ bezeichnet wird, bildet eher eine Ausnahme in einer Reihe numerischer Voraussagen, die eine Doppel- oder Multiimpulsstruktur über weite Parameterbereiche eines Einzelfilaments ergeben [168, 169, 161].

Für die nun folgenden Experimente gibt es daher noch keine allgemein akzeptierte Erklärung.

4.2.2 Experimente zur Selbstkompression

Für die Durchführung der Experimente zur Selbstkompression eines optischen Impulses im Filament wurde im Wesentlichen auf den Aufbau des Hohlfaserkompressors der Abbildung 4.4 zurückgegriffen. Allerdings vereinfacht sich der experimentelle Aufbau durch die Entfernung von Hohlfaser und Dispersionskompensation drastisch.

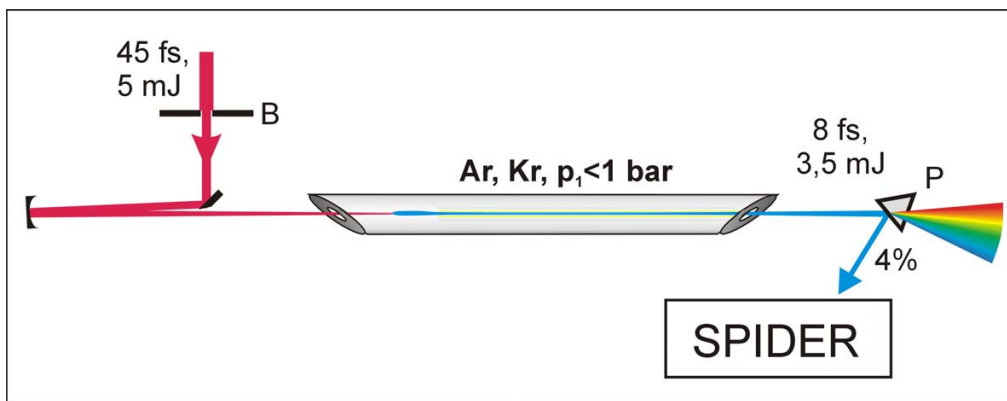


Abbildung 4.7: Schema des experimentellen Aufbaus zur Selbstkompression im Filament. Impulse eines Ti:Saphir Verstärkersystems mit einer Dauer von 45 fs und einer Impulsenergie von 5 mJ werden über einen konkaven Spiegel (Krümmungsradius $R = 3$ m) in eine 125 cm lange Gaszelle (Füllung: Argon oder Krypton, Druck $p < 500$ mbar) fokussiert. Im Gas entsteht ein Filament mit einer Länge von bis zu 50 cm, in dem der Impuls komprimiert wird. Der Frontreflex (4%) einer Prismenoberfläche dient als abgeschwächtes Signal, das mit dem SPIDER-Verfahren charakterisiert wird (B: Blende, P: Prisma).

Der Kompressor der Abbildung 4.7 besteht aus einer 125 cm langen Gaszelle, die auf beiden Seiten von 0,5 mm dicken Glasfenstern in Brewster-Anordnung abgeschlossen ist. Der Gasdruck innerhalb der Zelle kann im Bereich weniger mbar bis zu atmosphärischem Druck eingestellt werden. Das verwendete Ti:Saphir Verstärkersystem [170] stellt 5 mJ Impulse mit einer Dauer von 45 fs bei einer Repetitionsrate von 1 kHz zur Verfügung. Diese Impulse werden über einen langbrennweitigen, dielektrischen Spiegel (Krümmungsradius $R = 3$ m) in die mit Argon oder Krypton gefüllte Gaszelle fokussiert. Über eine Blende im Eingangsstrahl kann die Ausleuchtung des Fokussierspiegels

und damit der Durchmesser der Strahltaile im Fokus empfindlich eingestellt werden. Ein einzelnes räumlich und zeitlich stabiles Filament mit einer Länge von über 50 cm Länge wird auf diese Weise erzeugt, wodurch auch die für Filamente charakteristischen Fluktuationen der Strahlrichtung stark eingeschränkt sind. Diese stellen nun kein Hindernis mehr für eine Impulscharakterisierung dar. Solche Fluktuationen entstehen aus lokalen Intensitätsschwankungen im Strahlprofil und thermischen Dichteschwankungen im Edelgas. Ein stabiles, reines (Gauß-) Strahlprofil ist damit eine wichtige Voraussetzung für die Ausbildung eines nutzbaren Filaments. Allerdings gehen so 20% bis 50% der Impulsenergie durch die Blende verloren.

Im Falle einer Argonatmosphäre kann die Ausbildung eines Filamentes ca. 30 cm hinter dem Eintrittsfenster bei einem Druck von 400 mbar beobachtet werden. Der entstehende Plasmakanal ist durch seine bläuliche Fluoreszenz sichtbar. Für Argon-Drücke oberhalb von 600 mbar bricht das einzelne Filament in Multifilamente auf. In einer Kryptonatmosphäre ist dies bereits bei einem Druck über 400 mbar der Fall. Da Multifilamente instabil sind und räumlich stark fluktuieren, beschränken sich die Impulsmessungen auf den Fall eines einzelnen Filaments.

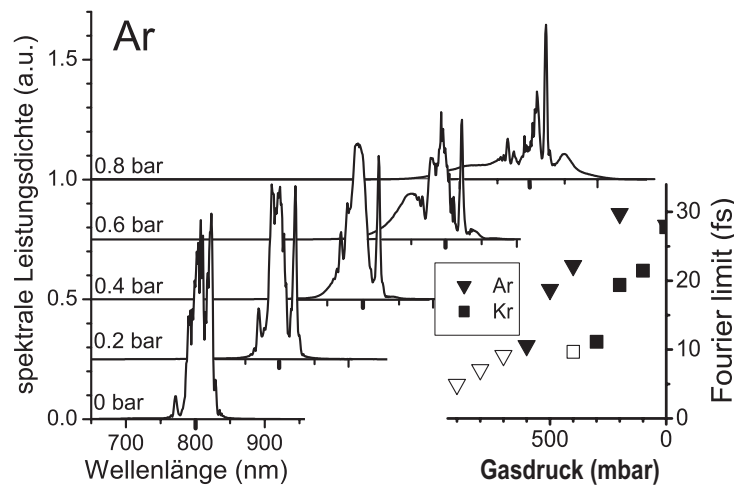


Abbildung 4.8: Druckabhängige Messung der spektralen Verbreiterung des Impulses im Filament einer Argonatmosphäre. Die Messung bei ausgepumpter Gaszelle zeigt bereits geringe Selbstphasenmodulation und zwei Ramanlinien bei 780 nm und 820 nm, die vermutlich in den Glasfenstern der Zelle entstehen. Das rechte Teilbild stellt die Fourier-limitierte Impulsdauer der Spektren dar. Gefüllte Symbole: einzelnes Filament; nicht gefüllte Symbole: Multifilamente. (Ar: Argon, Kr: Krypton)

Abbildung 4.8 zeigt die druckabhängige Verbreiterung des Impulsspektrums im Argongas. Das Ausgangsspektrum des Impulses ist vergleichbar dem bei komplett ausgepumpter Kammer (0 mbar) gemessenen. Das abgebildete Spektrum unterscheidet sich vom Laserspektrum um lediglich zwei zusätzliche Linien bei 780 nm und 820 nm, die vermutlich auf den Ramaneffekt in den Glasfenstern der Gaszelle zurückzuführen sind. Auffällig ist eine deutliche Blauverschiebung bei steigendem Edelgasdruck, d.h. eine überwiegende Zunahme kurzwelliger Komponenten in den Spektren. Eine solche Beobachtung ist charakteristisch für eine durch freie Elektronen hervorgerufene optische Nichtlinearität. Das rechte Teilbild stellt das den Spektren zugeordnete Fourierlimit der Impulsdauer dar. Die kürzeste mögliche Impulsdauer eines einzelnen Filaments liegt sowohl bei Argon als auch bei Krypton knapp unter 10 fs.

Der interessanteste Druckbereich in Abbildung 4.8 liegt knapp unter der Schwelle zur Multifilamentation, bei Argon zwischen 550 mbar bis 600 mbar und ca. 300 mbar bei Krypton, da hier die stärkste spektrale Verbreiterung im Einzelfilament beobachtbar ist. Die kritische Leistung zur Ausbildung eines Filaments [siehe Gl.(2.25)] kann in diesem Druckbereich für Argon zu $P_{\text{crit}}(\text{Ar}) = 18 \text{ GW}$ und für Krypton zu $P_{\text{crit}}(\text{Kr}) = 12 \text{ GW}$ abgeschätzt werden. In beiden Fällen konnte das Einsetzen der Multifilamentation bei $P > 5P_{\text{crit}}$ beobachtet werden, was in guter Übereinstimmung zur Literatur steht [161]. Im Übergangsbereich hoher Impulsleistung im Einzelfilament ($P \approx 3$ bis $4P_{\text{crit}}$) konnten die spektral verbreiterten Impulse mit der SPIDER-Technik charakterisiert werden.

Die in Abbildung 4.9 dargestellte Impulsmessung wurde bei einem Krypton-druck von 300 mbar und einer Filamentlänge von 55 cm aufgenommen. Zur Stabilisierung des Filaments musste die Impulsenergie mit Hilfe der Blende auf 2,5 mJ reduziert werden. Der hinter der Gaszelle gemessene Impuls [Abbildung 4.9 a) (iii)] besitzt dann noch eine Energie von 2 mJ. Impulsspektrum und spektrale Phase sind als durchgezogene Linien in Abbildung 4.9 b) dargestellt. Ohne zusätzliche Maßnahmen zur Dispersionskompensation wird eine spektral flache Phase über eine Bandbreite von 120 THz gemessen. Dieser Abschnitt erstreckt sich beginnend bei der Pumpwellenlänge über den gesamten kurzwelligen Spektralbereich, was zu einer Impulsdauer von 7,8 fs und Spitzenleistungen von über 100 GW führt. Das langsame Abknicken der spektralen Phase im Bereich großer Wellenlängen erzeugt in der Zeitdarstellung eine „rote“ Schulter an der Impulsvorderflanke.

Ein solches Resultat ist nur über eine Selbstkompression des Impulses in der

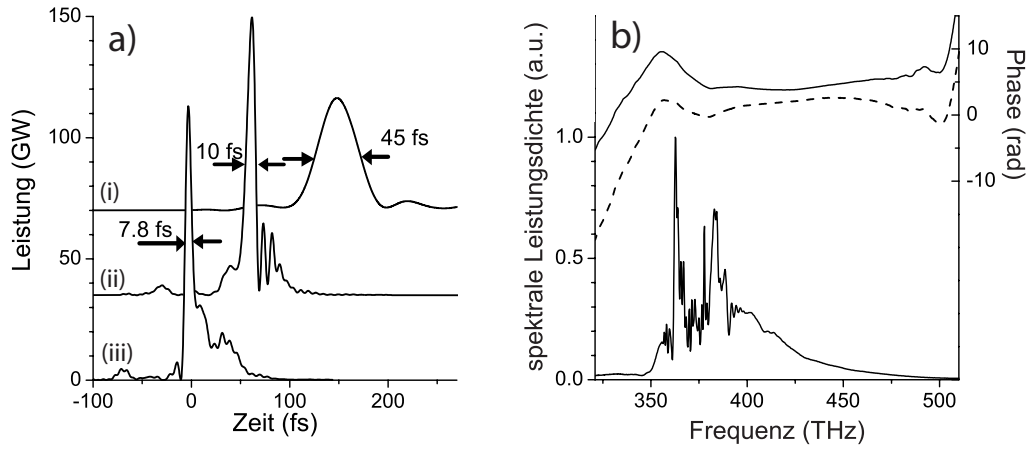


Abbildung 4.9: Selbstkompression von 45 fs Impulsen in einem Filament einer Kryptonatmosphäre bei einem Druck von $p = 300$ mbar. Impulsenergie am Eingang der Gaszelle: 2,5 mJ; Impulsenergie am Ausgang: 2 mJ. a) zeitliche Impulsformen: (i) Eingangsimpuls, (ii) Impulsform in der Gaszelle direkt vor dem Austrittsfenster, (iii) Impulsform hinter dem Kompressor. Die Impulsform in (ii) wurde basierend auf der Kenntnis der Dispersion im Strahlengang (0,6 mm Glas und 2,5 m Luftstrecke) aus der Messung in (iii) rekonstruiert. b) Spektrale Leistungsdichte und gemessene spektrale Phase am Ausgang des Kompressors (durchgezogene Linien) und am Ende des Filaments (gestrichelte Linie). Das zugehörige Impulsprofil ist in a)(iii) dargestellt. Die gestrichelte Kurve ist die korrigierte spektrale Phase des Impulses a)(ii).

Edelgaszelle, hervorgerufen durch das Zusammenspiel von linearen und nicht-linearen Prozessen gebundener und freier Elektronen, zu erklären. Daneben tragen auch die Materialdispersion des Austrittsfensters und der Luftstrecke bis zum SPIDER (insgesamt ca. 70 fs^2) zur Kompression bei. Subtrahiert man diesen Anteil von der gemessenen spektralen Phase [siehe Abbildung 4.9 b) gestrichelte Kurve], erhält man einen um den Faktor 4 komprimierten Impuls [siehe Abbildung 4.9 a) (ii)].

Bei höheren Impulsenergien weisen die komprimierten Impulse reproduzierbar einen negativen Chirp von bis zu -60 fs^2 auf. Für praktische Anwendungen stellt ein negativer Chirp keine Einschränkung dar, da er durch das Einfügen von Materialdispersion in den Strahlengang leicht kompensiert werden kann. Die SPIDER-Messung eines solchen extern nachkomprimierten Impulses ist in Abbildung 4.10 zu sehen. In diesem Fall beträgt die Energie des 45 fs dauernden Eingangsimpulses 4,5 mJ. Das Filament entsteht in einer Argonatmosphäre bei einem Druck von 520 mbar und liefert negativ gechirp-

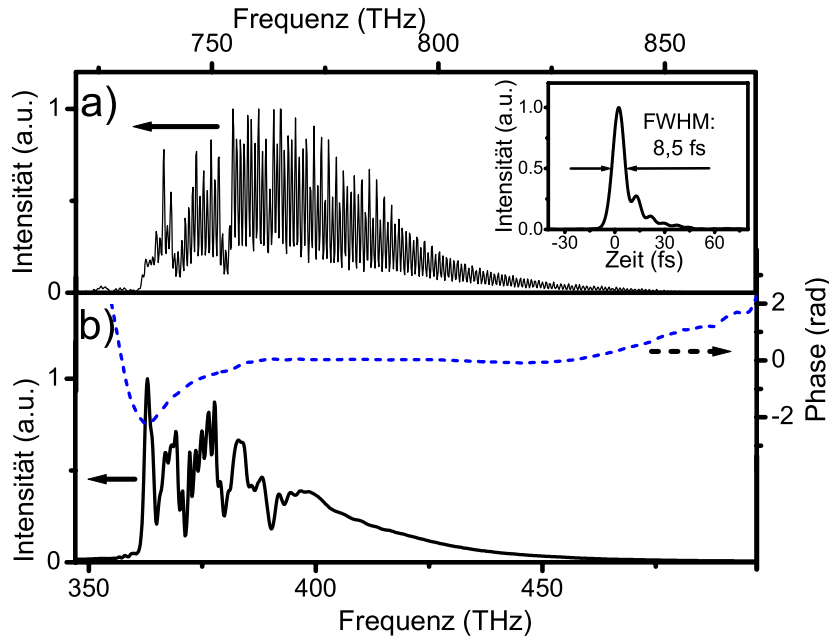


Abbildung 4.10: SPIDER-Messung eines im Filament selbstkomprimierten Impulses. Der Eingangsimpuls mit einer Dauer von 45 fs und einer Impulsenergie von 4,5 mJ wird in einer Argongaszelle ($p = 520$ mbar) auf eine Impulsdauer von 11 fs komprimiert. Die Impulsenergie hinter der Gaszelle beträgt 3 mJ. Der auftretende negative Chirp ($GDD \approx -60 \text{ fs}^2$) wird durch Einführung zusätzlicher Materialdispersion (1,4 mm Glas) hinter der Gaszelle kompensiert. a) SPIDER-Spur des resultierenden Impulses, der eine Dauer von 8,5 fs aufweist (Teilbild). b) Impulsspektrum (durchgezogene Linie) und spektrale Phase (gestrichelte Linie). Die Phase weist im Bereich hoher Frequenzen beginnend bei der Trägerfrequenz des Pumpimpulses (375 THz) einen nahezu konstanten Verlauf auf.

te 11 fs Impulse mit einer Energie von 3 mJ am Ausgang der Zelle. Durch das Einsetzen eines 1,4 mm dicken Glasplättchens in den Strahlengang vor dem SPIDER-Aufbau kann die Impulsdauer auf 8,5 fs reduziert werden [siehe Teilbild in Abbildung 4.10 a)]. Weitere Messungen ergaben minimale Impulsdauern von 7,3 fs. Impulse mit einer Dauer von 10 fs und einer Energie von 3,8 mJ konnten bei maximaler Eingangsenergie von 5 mJ gemessen werden.

4.2.3 Simulationsrechnungen zur Selbstkompression

Die Störung und Umformung des zeitlichen Impulsprofils in einer selbstführenden Geometrie kann nicht durch eindimensionale Modelle, wie sie z.B. im Falle der Impulspropagation in optischen Fasern zum Einsatz kommen,

beschrieben werden. Weder die Nichtlinearität noch die schwache Dispersion des Edelgases bieten einen Erklärungsansatz für die beobachtete Selbstkompression des Impulses oder dessen negativen Chirps. Aus diesem Grund werden dreidimensionale, zylindersymmetrische Modelle zur Simulation der Impulspropagation in einem Filament eingesetzt, die jedoch das Auftreten von Multifilamenten nicht mit einschließen können.

Zur Aufdeckung der zugrundeliegenden Mechanismen der im Experiment beobachteten Selbstkompression wurde die zeitliche und räumliche Entwicklung des Impulsfeldes numerisch untersucht (siehe Ref. [171, 172]). Hierzu wird die Ausbreitung des optischen Impulses entlang der Ausbreitungsrichtung z durch eine erweiterte nichtlineare Schrödingergleichung

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathcal{E}}(\vec{r}_\perp, z, t) = & \frac{i}{2k(\omega_0)} T^{-1} \nabla_\perp^2 \tilde{\mathcal{E}} + iD \tilde{\mathcal{E}} + i \frac{\omega_0}{c_0} n_2 T |\tilde{\mathcal{E}}|^2 \tilde{\mathcal{E}} \\ & - i \frac{k(\omega_0)}{2n_0^2 \varrho_c} T^{-1} \varrho_e \tilde{\mathcal{E}} - \frac{1}{2} \left(\frac{U_i W(|\tilde{\mathcal{E}}|^2) (\varrho_0 - \varrho_e)}{|\tilde{\mathcal{E}}|^2} + \sigma \varrho_e \right) \tilde{\mathcal{E}} \end{aligned} \quad (4.1)$$

beschrieben, welche die Einhüllende des elektrischen Feldes $\tilde{\mathcal{E}}$ an die Elektronendichte $\varrho_e(\vec{r}, z, t)$ koppelt. Die Erzeugung freier Elektronen im Verlauf eines ultrakurzen Impulses kann in folgender Form berechnet werden:

$$\frac{\partial}{\partial t} \varrho_e = W(|\tilde{\mathcal{E}}|^2) (\varrho_0 - \varrho_e) + \frac{\sigma}{U_i} \varrho_e |\tilde{\mathcal{E}}|^2, \quad (4.2)$$

wobei $W(|\tilde{\mathcal{E}}|^2)$ die Ionisationswahrscheinlichkeit von Argonatomen ist, wie sie von Peremolov et al. eingeführt wurde [173]. Bei Normaldruck beträgt die Dichte der neutralen Argonatome $\varrho_0 = 2,7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, während die kritische Plasmadichte (bei $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$) $\varrho_c = 1,73 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ und der Wirkungsquerschnitt der inversen Bremsstrahlung $\sigma = 1 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ ist [174]. Für die verwendeten Werte des nichtlinearen Brechungsindex n_2 und das Ionisationspotenzial U_i sei auf Tabelle 4.1 verwiesen.

Das gekoppelte Differenzialgleichungssystem (4.1 und 4.2) stellt eine Erweiterung der Gleichung (2.37) dar, die auch Einflüsse des dynamisch erzeugten Edelgasplasmas umfasst. So führt die Berücksichtigung im Plasma auftretender Stromdichten in der Wellengleichung $[\partial^2 \vec{P} / \partial t^2 \rightarrow \partial^2 \vec{P} / \partial t^2 + \partial \vec{J} / \partial t]$ in Gleichung (2.7)] zu den Korrekturtermen der zweiten Zeile von Gleichung (4.1). Der bereits in Abschnitt 2.2.2 diskutierte Einfluss freier Elektronen auf den Brechungsindex des Edelgases wird durch den $\propto \varrho_e / \varrho_c$ -Term ausgedrückt, während der letzte Term der Gleichung (4.1) die Feldabschwächung

durch einsetzende Multiphotonen- und Kaskadenionisation beschreibt. Insgesamt berücksichtigt das vorhandene Modell die Einflüsse von Beugung, Dispersion (druckabhängig, i.d.R. bis zur 5. Ordnung), Selbstfokussierung und Kerr-SPM, „Self-Steepening“, Plasma-Defokussierung und Plasma-SPM sowie die im gegebenen Intensitätsbereich dominierenden Ionisationsmechanismen. Der verwendete Parameterbereich orientiert sich an den experimentellen Ausgangswerten, wie der Eingangsimpulsenergie von 4 mJ, der Impulsdauer von 45 fs, dem FWHM Strahldurchmesser von 11 mm und der verwendeten Brennweite von $f = 1,5$ m, wodurch die Eingangsspitzenleistung bei ca. $5P_{\text{crit}}$ liegt. Es wurde von einem Argondruck von 0,6 bar ausgegangen, was einer Atomdichte von $1,6 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ entspricht. Sämtliche hier beschriebenen Simulationsrechnungen und die in diesem Abschnitt präsentierten Abbildungen wurden von Stefan Skupin am Département de Physique Théorique et Appliquée des Commissariat de l’Energie Atomique (CEA-DAM/Ile de France, B.P. 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France) durchgeführt und zur Verfügung gestellt.

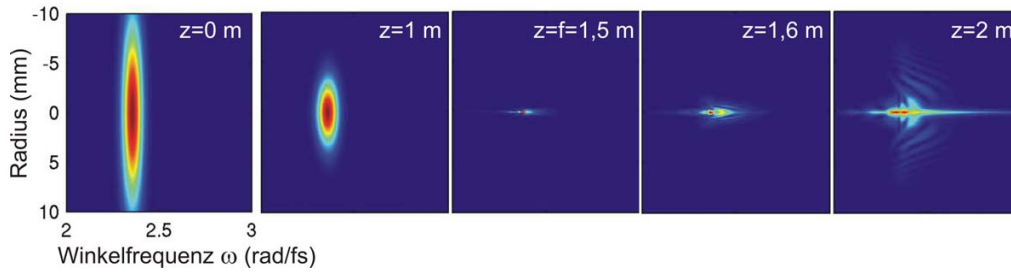


Abbildung 4.11: Simulation des räumlich-spektralen Verhaltens des durch den Fokusbereich ($z = 1,5$ m) und im Filament ($z > 1,6$ m) propagierenden Impulses. Dargestellt ist das frequenzabhängige Strahlprofil an fünf ausgesuchten Positionen entlang der Ausbreitungsrichtung z . Filamentierung und Superkontinuumserzeugung sind deutlich zu erkennen.

Abbildung 4.11 zeigt das spektral abhängige Strahlprofil an ausgesuchten Punkten entlang der Propagationsrichtung z . Das sowohl räumlich als auch spektral Gauß-förmige Profil des Eingangsimpulses schrumpft in radialer Ausdehnung durch den Einfluss der fokussierenden Optik bei $z = 0$ m. Dem Bereich des linearen Fokus bei $z = f = 1,5$ m, in dem der Impuls seine geringste laterale Ausdehnung aufweist, schließt sich der 50 cm lange Abschnitt der Selbstführung des Impulses im Filament an. Der Hauptanteil der Energie wird dabei in einem engen Bereich um die Strahlachse geführt, in dem die hohe Intensität eine stetige spektrale Verbreiterung, insbesondere auf der „blauen“ Seite des Ausgangsspektrums, bewirkt. Außerhalb des zentralen Fi-

lamentkanals kommt es zu einer schwachen, spektral schmalbandigeren, beugungsbedingten Abstrahlung. Auch die spektrale Verbreiterung nimmt mit zunehmendem radialen Abstand vom Filamentzentrum ab (siehe $z = 2$ m), was eine radiale Abhängigkeit der Fourier-limitierten Impulsdauer nahelegt.

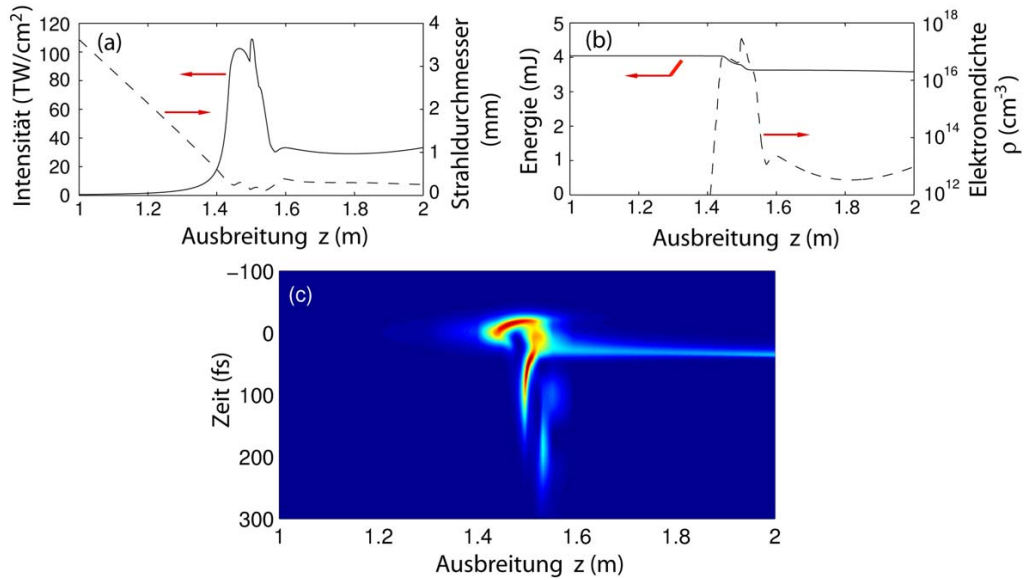


Abbildung 4.12: Simulation der Entwicklung charakteristischer Größen eines Filaments entlang der Propagationsrichtung z des Impulses. Dabei wird ein 45 fs dauernder Eingangsimpuls ($z = 0$ m) mit einem raumzeitlichen Gaußprofil langbrennweitig ($f = 1,5$ m) fokussiert. a) Spitzenintensität (durchgezogene Linie) und Strahldurchmesser (gestrichelte Linie), festgelegt durch die Punkte halber Spitzenintensität. b) Impulsenergie (durchgezogene Linie) und maximale Elektronendichte (gestrichelte Linie). c) Zeitliche Entwicklung des Impulses während der Propagation durch den Fokusbereich ($z = 1,5$ m) und durch das sich anschließende ($z > 1,6$ m) Filament.

In Abbildung 4.12 ist die Entwicklung charakteristischer Parameter der Filamentation, wie die Spitzenintensität des Impulses [durchgezogene Linie in Abbildung 4.12 a)], der Strahldurchmesser [gestrichelte Linie in Abbildung 4.12 a)], der Energieverlust [durchgezogene Linie in Abbildung 4.12 b)] und die maximale Elektronendichte [gestrichelte Linie in Abbildung 4.12 b)] über den letzten Meter der 2 m langen simulierten Strecke der Impulsausbreitung dargestellt. Dieser Bereich entspricht der tatsächlichen Laufstrecke des Impulses in der Edelgaszelle, wobei die letzten 50 cm durch die Filamentation geprägt sind (siehe Abbildung 4.7). Der nichtlineare Fokus, der den Beginn des Filaments markiert, liegt bei $z = 1,45$ m und somit wie erwartet gering-

fällig vor der Position des linearen Fokus mit $z = 1,5$ m. Die Intensität des Filaments erreicht hier ihren Maximalwert von ca. 100 TW/cm^2 , bevor sie hinter dem linearen Fokus auf ca. 30 TW/cm^2 absinkt. Die Elektronendichte des Plasmas folgt diesem Verhalten und fällt von ca. 10^{17} cm^{-3} im Fokus auf ca. 10^{13} cm^{-3} ab. Dieser abrupte Einbruch der Intensität minimiert ionisationsbedingte Verluste in der Impulsenergie, wodurch diese von anfänglichen 4 mJ auf lediglich 3,7 mJ zurückgeht. Oberhalb von $z = 1,6$ m stabilisiert sich das Filament bei einem Durchmesser von ca. $300 \mu\text{m}$.

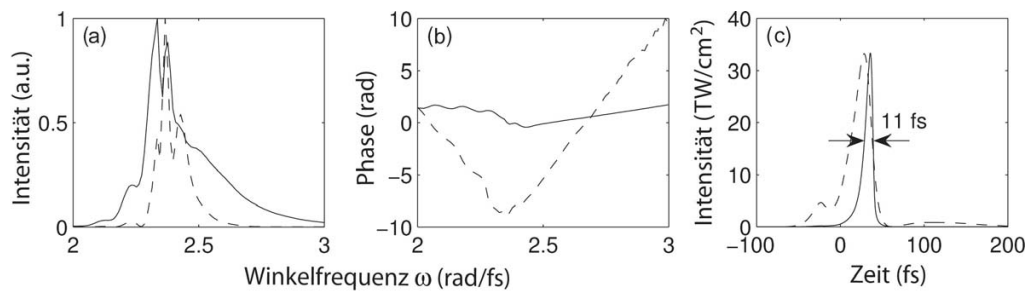


Abbildung 4.13: Selbstkompression des 45 fs dauernden Eingangsimpulses auf eine Impulsdauer von 11 fs im 50 cm langen Filament als Resultat der Simulationsrechnung. a) Spektraler Intensitätsverlauf, b) spektrale Phase und c) zeitlicher Intensitätsverlauf bei $z = 1,6$ m, knapp hinter dem Bereich des linearen Fokus (gestrichelte Linien) und am Ende des 50 cm langen Filaments bei $z = 2$ m (durchgezogene Linien).

Die Abbildung 4.12 c) dokumentiert die zeitliche Entwicklung des auf der Strahlachse propagierenden Impulsprofils, das durch Schnitte bei konstantem z visualisiert werden kann. Zwei solcher Schnitte sind in Abbildung 4.13 c) für die Fälle $z = 1,6$ m (gestrichelte Linie) und $z = 2$ m (durchgezogene Linie) eingezeichnet und bestätigen eine 4-fache Impulskompression im 50 cm langen Filament. Die interessanteste Dynamik findet jedoch innerhalb der ersten 15 cm des Filaments statt. Dieser Abschnitt entspricht in etwa der zweifachen Rayleigh-Länge und wird von dem im DSR-Modell beschriebenen Mechanismus geprägt. Im Bereich des nichtlinearen Fokus kommt es zunächst zu einer Fokussierung der Impulsvorderflanke, während die Hinterflanke durch das eingeschaltete Plasma defokussiert wird. Sobald die Dichte des Plasmas wieder abgenommen hat, refokussiert sich die zuvor dezimierte Hinterflanke an der Position des linearen Fokus ($z = 1,5$ m), und ein Doppelpuls entsteht. Ein solcher De- und Refokussierungszyklus findet noch ein zweites Mal statt, wobei der vordere Impuls des entstehenden Paares durch die Vorderflanke des refokussierten Anteils gebildet wird und damit in der

Nähe des Zentrums des 45 fs Ausgangsimpulses positioniert ist. Dieses zeitliche Fragment mit einer Dauer von ca. 26 fs kann sich oberhalb von $z = 1,6$ m bei einer Intensität knapp über 10^{13} W/cm² zeitlich stabilisieren, wohingegen andere zeitliche Impulskomponenten rasch abgelenkt werden. Während demnach Vorder- und Hinterflanke des Eingangsimpulses nach dem Durchlaufen der räumlichen Energieumverteilung in radiale Richtung divergieren, formt das zeitliche Impulszentrum einen engen Wellenleiter, der die eingeschlossene Energie bei geringer Plasmadichte erhält.

Abbildung 4.13 a) zeigt das Spektrum des selbstgeführten Impulses, das sich durch Selbstphasenmodulation zunehmend verbreitert. Diese spektrale Verbreiterung findet hauptsächlich im Bereich der Selbstführung des Impulses oberhalb von $z > 1,6$ m statt und komprimiert den Impuls von 26 fs auf 11 fs. In Übereinstimmung mit den Untersuchungen von Gaeta [36] bewirkt die steile Hinterflanke des Impulses im Zusammenspiel mit SPM eine dominierende Verbreiterung des Spektrums in Richtung kurzer Wellenlängen. Teil b) der Abbildung 4.13 zeigt die spektrale Phase an den beiden verglichenen Positionen $z = 1,6$ m, also am Anfang des stabilen Filaments (gestrichelte Linie) und am Ende desselben bei $z = 2$ m (durchgezogene Linie). Erstaunlicherweise ist der kurzwellige Anteil des Impulsspektrums ($\lambda < 780$ nm) stets optimal komprimiert und weist eine ideal flache Phase auf. Der intensitätsärmere, langwellige Bereich des Spektrums hingegen eilt dem Hauptimpuls als kleiner Satellitenimpuls oder als ausgestreckte Schulter voraus, was durch die negative Steigung der spektralen Phase (negative Gruppenverzögerung) bei $\omega < 2,4$ PHz deutlich wird. Kurz- und langwellige Impulsflanke sind zeitlich getrennt. Der resultierende Phasenknick bei $\omega \approx 2,4$ PHz glättet sich im Verlauf der Impulsausbreitung im Filament. Offensichtlich breiten sich hier langwelligere Spektralkomponenten langsamer als kurzwellige aus, wodurch die vorausseilende „rote“ Impulsschulter allmählich mit dem Hauptimpuls verschmilzt. Den stärksten Beitrag zur Impulskompression liefert jedoch der blaue Anteil des Spektrums (bei $\omega > 2,4$ PHz), der stets komprimiert ist und sich während der Propagation des Impulses massiv verbreitert. Dieser Prozess wird erst durch das Ende des Filaments gestoppt bzw. durch das Einsetzen der Multifilamentation bei einer Skalierung zu höheren Gasdrücken (siehe Experiment).

Die Selbstkompression des Impulses läuft demnach in zwei Stufen ab. Zunächst werden im fokusnahen Abschnitt Vorder- und Hinterflanke des Impulses durch Defokussierung und Beugung abgestreift, was die Impulsdauer fast halbiert (von 45 fs auf ca. 26 fs) und knapp 10% der Impulsenergie kostet. Im sich anschließenden Bereich der Selbstführung findet die eigentliche nicht-

lineare spektrale Verbreiterung und eine Selbstkompensation der Dispersion statt, wodurch sich die Impulsdauer nochmals um über einen Faktor 2 verkürzt. Sämtliche charakteristischen Eigenschaften, die in den Simulationen zutage treten, wie eine Impulsdauer von ca. 10 fs am Ende des 50 cm langen Filaments, die dominierende Blauverschiebung des Spektrums wie auch die spezielle Form des Impulsspektrums und der charakteristische Phasenknick in der Nähe der Pumpwellenlänge und die dadurch verursachte Asymmetrie der zeitlichen Impulsform konnten experimentell bestätigt werden.

4.2.4 Diskussion

Die berechnete Impulsstruktur zeigt, dass das experimentell beobachtbare Phänomen der Selbstkompression eines Impulses im Filament im Wesentlichen auf einer raumzeitlichen Energieumverteilung beruht. Diese führt im Zentralbereich des Strahls, innerhalb eines Durchmessers von $100\text{ }\mu\text{m}$, zu einem zeitlich stark komprimierten Impulsverlauf [siehe Abbildung 4.13 c)]. Unter Berücksichtigung aller Impulskomponenten innerhalb eines Durchmessers von $300\text{ }\mu\text{m}$ beträgt die Impulsdauer 15 fs, bei einem Durchmesser von $800\text{ }\mu\text{m}$ sind es bereits 28 fs. Diese radiale Inhomogenität der Impulsdauer wird z.T. auch durch die starke Lokalisation des Plasmakanals hervorgerufen. Obwohl nur der Zentralbereich des Strahls im Experiment durch die Verwendung einer Blende vor dem SPIDER-Aufbau charakterisiert wurde, laufen die vorhandenen Strahlrichtungsschwankungen auf eine z.T. räumlich gemittelte Charakterisierung über ca. 10 Impulse hinaus. Gemittelte Impulsdauern von unter 8 fs, also deutlich unter dem simulierten Bestwert von knapp 11 fs in Argon, konnten so reproduzierbar gemessen werden. Es sei jedoch angemerkt, dass die kürzesten Impulsdauern in einer Kryptonatmosphäre erzeugt wurden, während Selbstkompression im Argongas nur bis herunter auf 10 fs beobachtet werden konnte, in sehr guter Übereinstimmung zur Simulation.

Zu beachten ist auch, dass die Spitzenleistungen von Eingangs- (50 bis 100 GW) und komprimiertem Impuls (100 bis 500 GW) im Experiment unter der Annahme eines radial konstanten Impulsprofils abgeschätzt wurden. Die theoretischen Werte der Impulsspitzenleistung (Eingangsspitzenleistung: 60 GW, Ausgangsspitzenleistung: 2,5 GW) relativieren hingegen den Effekt einer Erhöhung der Spitzenleistung durch die Selbstkompression. Diese Diskrepanz ist durch die Auswahl eines Zentralbereiches des Filaments mit $100\text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser für die Beobachtung einer maximalen Kompression in der Simulation zu erklären. Nur ein Bruchteil der gesamten transmittierten Energie wird in diesem Bereich geführt. In den Simulationen wird ebenfalls deutlich, dass die Effizienz der Impulskompression empfindlich von den Eingangsstrahlparametern

tern, wie der Spitzenleistung ($5P_{\text{crit}}$), dem Strahldurchmesser (11 mm) und der Brennweite ($f = 1,5 \text{ m}$), abhängt. Abweichungen dieser Größen um lediglich 10% erhöhen die komprimierte Impulslänge bereits um 50%, da entweder Beugungseffekte oder weitere De- und Refokussierungszyklen einsetzen. Im Experiment taucht hingegen bei höheren Energien ein negativ gechirpter Impuls auf, der durch die Einführung von Materialdispersion leicht nachkomprimiert werden kann. In Ref. [36] wird ein solcher Effekt im Falle reiner Plasma-Nichtlinearität beschrieben. Aber auch die langsamere Propagation der vorseilenden, „roten“ Impulsflanke gegenüber dem höherfrequenten Hauptimpuls könnte ein Indiz dafür sein. Abweichungen in der Substruktur eines gemessenen Impulsspektrums [siehe z.B. Abbildung 4.10 b)] vom simuliertem Spektrum der Abbildung 4.13 a) lassen sich über Ramanstreuung in den Kammerfenstern und der Ausbildung kleiner Satellitenimpulse im Experiment erklären. Abgesehen von diesen Diskrepanzen besteht eine ausgezeichnete quantitative Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation.

Die in den Simulationen zutage tretende radiale Abhängigkeit der Impulsdauer könnte die Anwendung der Filamentkompression zur Untersuchung nichtlinearer Effekte zweiter oder dritter Ordnung, wie sie z.B. in Pump-Probe-Experimenten ausgenutzt werden, einschränken. Für das Haupteinsatzgebiet ultrakurzer Impulse hoher Energie, wie z.B. bei der Untersuchung von Multiphotonenionisation, der Erzeugung von hohen Harmonischen und Attosekundenimpulsen, sollte die durch die relativ simple Filamentkompression bereitgestellte Kombination aus hoher Impulsenergie und einer zeitlichen Impulsstruktur unter 10 fs von erheblichem Vorteil sein.

Kapitel 5

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Verfahrenstechniken zur Charakterisierung ultrakurzer Impulse in Hinblick auf eine erhöhte Praktikabilität und Zuverlässigkeit im Impulsdauerbereich unter 10 fs optimiert. Zusätzlich konnten komplett neue Charakterisierungsverfahren entwickelt und getestet werden. Diese Verfahren basieren entweder auf der SPIDER- oder der FROG-Technik und wurden sowohl an einem stabilen 7-fs Laseroszillator erprobt als auch für die Untersuchung neuer Impulserzeugungsverfahren verwendet. Die folgende Übersicht stellt diese Charakterisierungstechniken zusammen, wobei kurz auf deren spezifische Besonderheiten und Stärken eingegangen wird.

1. Ultrakurzpuls-SPIDER: Basierend auf Erkenntnissen bereits existierender Ultrakurzpuls-SPIDER-Varianten wird ein kompaktes, planares Design vorgestellt, das spektrale Bandbreiten von über einer optischen Oktave unterstützt. Dabei konnten spezifische Schwachstellen der SPIDER-Technik, die insbesondere die Rekonstruktion spektral stark modulierter Superkontinuumsimpulse erschweren, auf verschiedene Weisen kompensiert werden. Durch eine heterodyne Messung von SPIDER-Interferogrammen gelingt eine effektive Vergrößerung des Dynamikbereichs der Messung um ca. 2 Größenordnungen. Zusätzlich konnte ein effizientes und interferometrisch stabiles Strahlteilungskonzept im SPIDER-Aufbau analytisch, numerisch und experimentell verifiziert werden, das die Empfindlichkeit dieses parameteroptimierten Designs um eine Größenordnung verbessert. Die Leistungsfähigkeit dieser SPIDER-Variante konnte über eine Echtzeitcharakterisierung von Sub-4 fs-Impulsen eines zweistufigen Hohlfaserkompressors überprüft werden.

2. Ultrakurzpuls-SEA-SPIDER: Mit der SEA-SPIDER-Technik wird ein neues Charakterisierungsprinzip auf Impulsdauern unter 10 fs optimiert und experimentell an Sub-7 fs-Impulsen getestet. Die Übertragung des SPIDER-Prinzips auf ein räumliches Interferogramm birgt eine Reihe von Vorteilen, die sich insbesondere bei der Analyse von Superkontinuumsimpulsen auszahlen. So können ultrabreitbandige SEA-SPIDER-Interferogramme mit niedriger spektraler Auflösung detektiert werden, wobei sich eine starke Modulation des Impulsspektrums nicht mehr als störend erweist.

3. Interferometrisches FROG: Diese in der vorliegenden Arbeit entwickelte neue Charakterisierungsmethode komplexer ultrakurzer Impulse ist eine direkte Erweiterung der interferometrischen Autokorrelation (IAC) zum interferometrischen FROG (IFROG). Eine IFROG-Spur enthält redundante Information in einem Umfang, wie sie keine andere FROG-Methode aufweisen kann. Über Fourierfilterung kann aus ihr eine untergrundbehaftete SHG-FROG-Spur und zusätzlich eine neuartige, untergrundfreie FROG-Spur aus dem fundamental modulierten (FM) Anteil gewonnen werden. Eine solche FM-FROG-Verteilung weist eine Reihe von Besonderheiten auf. So kann die FM-FROG-Amplitude aufgrund ihrer Empfindlichkeit gegenüber der Impulphase auch negative Werte annehmen und fällt außerdem mit zunehmender Zeitkoordinate langsamer ab, als dies beim SHG-FROG der Fall ist. Dieses Merkmal entspricht einer effektiven Erhöhung des Dynamikbereichs der Methode, wodurch sich dieses Verfahren für die Charakterisierung komplexer zeitlicher Impulsstrukturen besonders eignet. Eine weitere Konsequenz ist die Notwendigkeit eines verallgemeinerten Ansatzes zur iterativen Impulsrekonstruktion aus einer FM-FROG-Spur. Die Funktionstüchtigkeit dieses neuen Algorithmus wird an verschiedenen experimentellen Beispielen demonstriert und hält direkten vergleichenden Tests stand. Insgesamt bietet die Charakterisierungsmethode des interferometrischen FROG die Möglichkeit, vorhandene interferometrische Autokorrelatoren zu präzisen Instrumenten einer vollständigen Impulscharakterisierung zu erweitern.

Zur Erzeugung intensiver ultrakurzer Impulse wurden zwei Kompressionsverfahren, die Hohlfaserkompression und die Filamentkompression verstärkter Ti:Saphir-Laserimpulse, genutzt, wobei speziell der Schritt der Dispersionskompensation auf neuen Techniken beruht.

Im Falle der Hohlfaserkompression kam das moderne Konzept ultrabreitbandiger gechirpter Spiegel, die nach dem BASIC-Design („Back-Side Coating“) hergestellt wurden, zum Einsatz. In Kombination mit einem zweistufigen, Argongas-gefüllten Hohlfaserkompressor konnten so die momentan kürzesten,

nicht adaptiv komprimierten Impulse mit einer Dauer von lediglich 3,8 fs und einer Energie von $25 \mu\text{J}$ erzeugt werden. Innerhalb dieser Halbwertsdauer kann das elektrische Impulsfeld lediglich 1,5 Perioden vollführen.

Weitere Erkenntnisse über die physikalischen Ursache von häufig detektierten Phasenstörungen wurden mit Experimenten der Selbstführung von Femtosekundenimpulsen in einem Edelgasfilament gewonnen. So konnte der Ursprung eines charakteristischen Knicks der spektralen Impulsphase in der Umgebung der Impulsträgerfrequenz, der zu einer zeitlichen Trennung von lang- und kurzwelligem Spektralbereich und damit zu einem Doppelimpuls führt, der Plasmazone am Ort des Strahlfokus zugeordnet werden. Der Zerfall eines ultrakurzen Impulses in einen Doppelimpuls ist ein typisches Phänomen bei der Ausbildung von Filamenten. Ansätze von Filamentation sind jedoch auch bei Hohlfaserkompressoren nur schwer zu vermeiden.

In den Experimenten zur Selbstführung verstärkter Ti:Saphir-Lasersimpulse in einer Edelgaszelle gelang erstmals der Nachweis eines hocheffizienten Prozesses der Selbstkompression dieser optischen Femtosekundenimpulse während der Propagation in einem ca. 50 cm langen Filament. Mit Hilfe des SPIDER-Verfahrens konnte ein maximaler Kompressionsfaktor von 6 in Argon und Krypton ermittelt werden, der die 45 fs langen Verstärkerimpulse auf bis zu 7,3 fs verkürzt, ohne dass zusätzliche Maßnahmen zur Dispersionskompensation eingesetzt werden. Dieser Effekt konnte lediglich im Impulsenergiebereich zwischen 2 mJ und 5 mJ festgestellt werden, wobei der Energiedurchsatz durch die Edelgaszelle bis zu 80 % betrug. Simulationen zur Impulsformung in einem Einzelfilament unter Argonatmosphäre reproduzieren die beobachtete Selbstkompression auch quantitativ. Sie bestätigen den engen Parameterbereich, in dem die Selbstkompression am effektivsten ist, und liefern einen vollständigen Einblick in den Impulsformungsprozess während der Propagation durch die Argongaszelle. So führen zwei zeitlich und räumlich hintereinandergeschaltete Prozesse zur Impulsverkürzung im Filament. Die experimentelle Bestätigung dieser komplexen Dynamik gelingt hauptsächlich durch den Einsatz der SPIDER-Technik, die neben den typischen blauverschobenen Impulsspektren ein charakteristisches Verhalten der spektralen Impulsphase vorgibt. So konnte z.B. der markante Knick der spektralen Impulsphase bei der Trägerfrequenz des Eingangsimpulses in den Simulationen reproduziert werden. Vom technischen Standpunkt stellt dieses Verfahren der Selbstkompression verstärkter Impulse in einem Edelgasfilament ein sehr einfaches Konzept dar. Im Vergleich zum Hohlfaserkompressor kann hier sowohl auf die Hohlfaser als auch auf die zusätzliche Dispersionskompensation, z.B. durch gechrpte Spiegel, verzichtet werden. Filamente

erlauben zusätzlich die Kompression höherenergetischer Impulse, während Hohlaserkompressoren in der Regel unterhalb einer Impulsenergie von 1 mJ arbeiten. Zur Untersuchung nichtlinearer Prozesse hoher Ordnung könnten Filamentkompressoren deshalb in Zukunft technisch aufwändigere Kompressionsverfahren ersetzen.

Weitere Fortschritte auf dem Gebiet der Impulskompression werden stets Hand in Hand mit immer ausgefeilteren Techniken der Impulscharakterisierung gehen. So weist der momentane Trend in Richtung einer präziseren und vollständigen Charakterisierung einzelner Attosekundenimpulse mittels modifizierter FROG- und SPIDER-Verfahren. Diese Techniken werden demnach immer größeren spektralen Bandbreiten und komplexeren Spektren ausgesetzt sein. Durch die Realisierung des interferometrischen FROG ist eine der letzten Lücken auf dem Gebiet vollständiger Charakterisierungsverfahren geschlossen worden, die den Impuls räumlich integriert vermessen. Das bereits in einer räumlichen Koordinate empfindliche SEA-SPIDER stellt einen ersten Schritt in Richtung einer vollständigen raum-zeitlichen Impulscharakterisierung dar.

Anhang A

Die Wigner-Funktion eines ultrakurzen optischen Impulses

Ursprünglich wurde die Wigner-Funktion zur quantenmechanischen Beschreibung eines Teilchens eingeführt, die diesem eine Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung im zweidimensionalen Phasenraum des Orts und Impulses zuordnet [175]. Da eine Wigner-Funktion allgemein für zwei durch eine Fouriertransformation verknüpfte Variablen aufgestellt werden kann, lässt sich auch ein optischer Impuls auf diese Weise im Zeit-Frequenz-Phasenraum vollständig beschreiben [176, 177]. Obwohl diese Art der Darstellung eines optischen Impulses experimentell nicht direkt zugänglich ist, erweist sie sich für theoretische Untersuchungen als sehr hilfreich, da sie ein vollständiges Bild des spektral- und zeitabhängigen Verlaufs eines Impulses liefert [178, 179].

Die Wigner-Verteilung eines optischen Impulses lässt sich sowohl aus der zeitlichen als auch aus der spektralen Repräsentation eines elektrischen Feldes direkt berechnen

$$W(t, \omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\mathcal{E}}\left(t + \frac{t'}{2}\right) \tilde{\mathcal{E}}^*\left(t - \frac{t'}{2}\right) e^{i\omega t'} dt' \quad (\text{A.1})$$

$$= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E\left(\omega + \frac{\omega'}{2}\right) E^*\left(\omega - \frac{\omega'}{2}\right) e^{-i\omega' t} d\omega' \quad (\text{A.2})$$

und liefert stets reelle Werte. Gauß-förmige Signale ergeben eine rein positive Wigner-Verteilung. Negative Bereiche der Verteilung bereiten hingegen Schwierigkeiten bei der Interpretation. Verständlicher wird deren Vorhandensein unter Berücksichtigung der Unschärferelation zwischen den konjugierten Variablen ω und t . So kann einem, in beiden Variablen scharf definierten Punkt der Wigner-Verteilung kein „chronozyklischer“ Intensitätswert

$W(t, \omega)$ zugeordnet werden. Innerhalb eines Phasenvolumens, größer als π , muss sich jedoch stets ein positiver integraler Wert ergeben. Durch Integration längs einer der beiden Variablen von $W(t, \omega)$ erhält man die sog. Marginals. Diese stets positivwertigen eindimensionalen Funktionen entsprechen bekannten physikalischen Größen eines optischen Impulses: der Intensitätseinhüllenden

$$I(t) = |\tilde{\mathcal{E}}(t)|^2 = \int_{-\infty}^{\infty} W(t, \omega) d\omega \quad (\text{A.3})$$

und dem Impulsspektrum

$$I(\omega) = |E(\omega)|^2 = \int_{-\infty}^{\infty} W(t, \omega) dt. \quad (\text{A.4})$$

Eine Integration der Wigner-Verteilung über den gesamten Phasenraum liefert die Energie des Lichtimpulses.

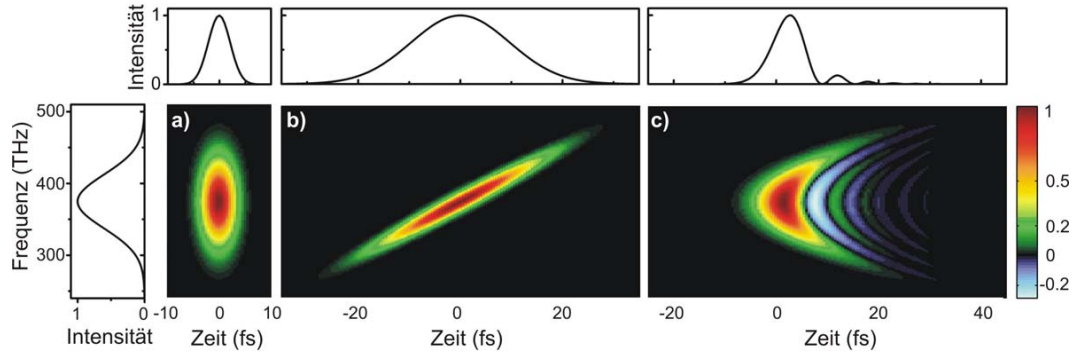


Abbildung A.1: Wigner-Verteilungen und ihre Zeit- und Frequenz-Marginals: a) Fourier-limitierter 5-fs Impuls (800 nm Zentralwellenlänge), b) Derselbe Impuls nach dispersiver Streckung ($\text{GDD} = 40 \text{ fs}^2$) auf eine Dauer von 23 fs, c) Der Einfluß reiner Dispersion dritter Ordnung ($\text{TOD} = 100 \text{ fs}^3$) streckt den Impuls in diesem Fall auf eine Dauer von 7 fs. Negative Bereiche der Spur (blau eingezeichnet) führen hierbei zu nacheilenden Satellitenimpulsen. Die Integration der Verteilung entlang ihrer Zeit- oder Frequenzachse ergibt den spektralen bzw. zeitlichen Intensitätsverlauf des Impulses.

Beispiele verschiedener Wigner-Verteilungen sind in Abbildung A.1 aufgezeigt. So stellt die Abbildung A.1 a) die zugehörige Spur des Fourier-limitierten Gauß-Impulses aus Abbildung 2.1 dar. Gruppenlaufzeitdispersion streckt und chirpt diesen Impuls, verändert jedoch im Falle eines Gauß-Impulses nicht die Signalform [siehe Abbildung A.1 b)]. Erst Dispersion dritter Ordnung

führt zu einer asymmetrischen Störung der zeitlichen Impulsform und verursacht damit das Auftreten negativer Bereiche in der zugehörigen Wigner-Repräsentation der Abbildung A.1 c). Diese Beispiele verdeutlichen das intuitive Verhalten der Wigner-Verteilung eines optischen Impulses, die stets dem Verlauf der Gruppenverzögerung des Impulses folgt. Im experimentellen Teil dieser Arbeit wird eine messbare Verteilungsfunktion eines ultrakurzen optischen Impulses vorgestellt, die in einigen interessanten Merkmalen der Wigner-Funktion ähnelt.

Anhang B

Gerchberg-Saxton-Algorithmus

Das Schema der Abbildung B.1 zeigt den Gerchberg-Saxton-Algorithmus zur iterativen Rekonstruktion der Phase eines Laserimpulses aus dessen Intensitätseinhüllender $I(t)$ bzw. der SHG-Intensitätsautokorrelation und dem Impulsspektrum $I(\omega)$. Beginnend mit einem willkürlichen Phasenverlauf, der Startphase $\alpha(t)$, wird aus der bekannten zeitlichen Amplitude $\sqrt{I(t)}$ das elektrische Startfeld konstruiert. Nach der Fouriertransformation in den Frequenzraum ersetzt man die Amplitude durch die Wurzel der gemessenen

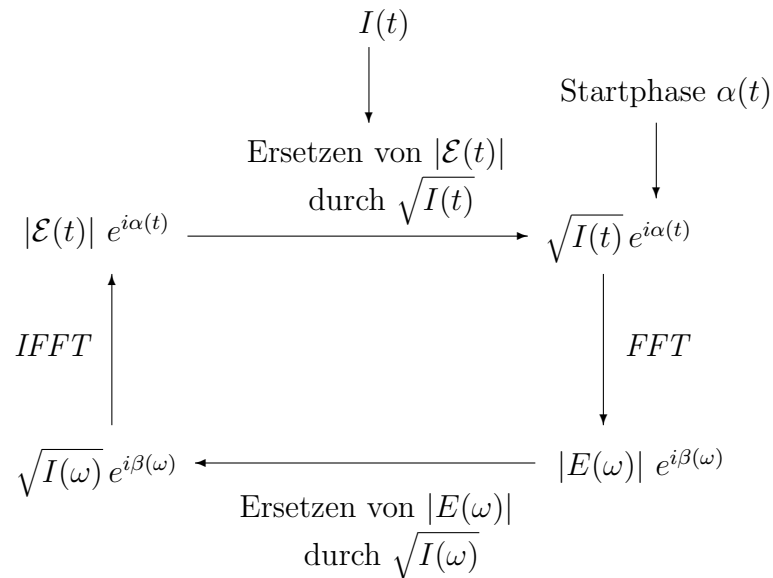


Abbildung B.1: Schema des Gerchberg-Saxton Algorithmus zur Rekonstruktion der Phase eines optischen Impulses aus Autokorrelation (ein zusätzlicher, vorangeschalteter Algorithmus liefert ein mögliches $I(t)$ [180]) und Spektrum $I(\omega)$.

spektralen Leistungsdichte $I(\omega)$. Die spektrale Phase bleibt dabei unverändert. Eine inverse Fouriertransformation zurück in die Zeitdomäne ermöglicht es dort wieder, die Amplitude ohne Beeinflussung der Phase auszutauschen. Dieser Vorgang wird solange wiederholt, bis der Algorithmus zu einem bestimmten Impulsfeld bzw. zu einer bestimmten Phase konvergiert. Da jedoch anstelle von $I(t)$ lediglich die Autokorrelation bekannt ist, besteht ein Ansatz im iterativen Auffinden eines möglichen Intensitätsverlaufs über einen weiteren Algorithmus mit der Bezeichnung TIVI (Temporal Information Via Intensity) [180, 181]. Ähnlich dem Gerchberg-Saxton-Algorithmus wird auch beim TIVI zwischen beiden Fourierdomänen gewechselt, wobei als Randbedingungen im Spektralraum die Fourier-transformierte Autokorrelation und im Zeitraum die Bedingung einer nicht negativen Intensität eingesetzt werden.

Anhang C

FM-FROG- Impulsrekonstruktion

Das Ziel des FM-FROG-Algorithmus (siehe Abbildung C.1) ist die Rekonstruktion des elektrischen Feldes \vec{E} auf einem äquidistant unterteilten Zeitgitter ($t = t_{-N/2}, \dots, t_{N/2-1}$) mit Schrittweite Δt . Die k Einträge des Vektors

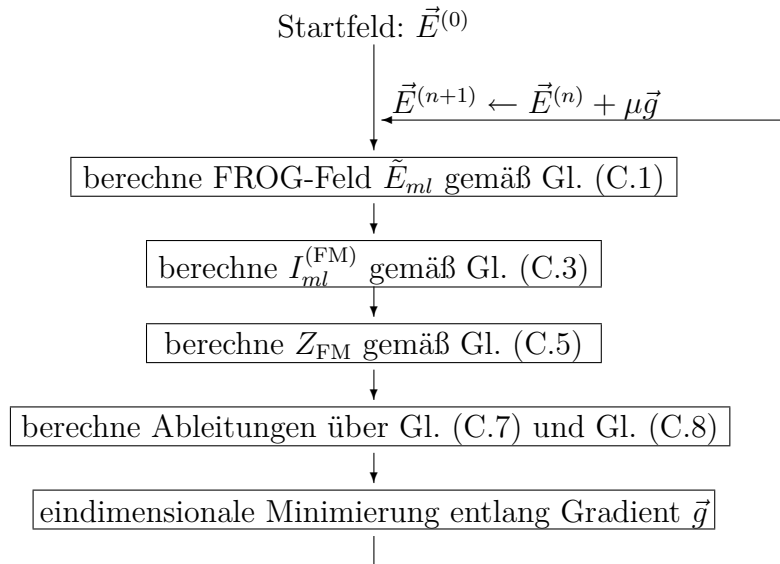


Abbildung C.1: Flussdiagramm des Algorithmus, der zur Rekonstruktion des elektrischen Impulsfeldes \vec{E} aus einer FM-FROG-Spur benutzt werden kann.

\vec{E} sind über $E_k := E(t_k)$ festgelegt. Mit dieser Notation des elektrischen Feldes kann man das FROG-Feld der Gleichung (3.15) als zweidimensionales Array beschreiben:

$$\tilde{E}_{ml} = \sum_{k=-N/2}^{N/2-1} E_k E_{k-l} \exp \frac{2\pi i k m}{N}. \quad (\text{C.1})$$

Hierbei steht der Index l repräsentativ für die verschiedenen Schritte im Pulsabstand τ_l , wohingegen der Index m die diskreten Frequenzwerte ω_m durchnummeriert. Numerisch kann das SH-Feld der Gleichung (3.16) als entarteter Fall der Gleichung (C.1) mit $l = 0$ betrachtet werden:

$$\tilde{E}_m^{(\text{SH})} = \tilde{E}_{m0} = \sum_{k=-N/2}^{N/2-1} E_k^2 \exp \frac{2\pi i k m}{N}. \quad (\text{C.2})$$

Mit Hilfe dieser zwei Ausdrücke läßt sich die FM-FROG-Spur auf dem m - l -Gitter berechnen, und Gleichung (3.17) nimmt dann die Form

$$I_{ml}^{(\text{FM})} = \text{Re} \left[\tilde{E}_{ml} \tilde{E}_{m0}^* \exp \frac{i\pi m l}{N} \right] = \quad (\text{C.3})$$

$$\left(\tilde{R}_{ml} \tilde{R}_{m0} + \tilde{J}_{ml} \tilde{J}_{m0} \right) c_{ml} + \left(\tilde{R}_{ml} \tilde{J}_{m0} - \tilde{J}_{ml} \tilde{R}_{m0} \right) s_{ml}$$

an. Sämtliche Indizes sind auf den Bereich ganzer Zahlen zwischen $-N/2$ und $N/2 - 1$ beschränkt. Folgende Definitionen wurden verwendet:

$$\begin{aligned} c_{ml} &= \cos(\pi m l / N), \\ s_{ml} &= \sin(\pi m l / N), \\ \tilde{R}_{ml} &= \text{Re}[\tilde{E}_{ml}], \\ \tilde{J}_{ml} &= \text{Im}[\tilde{E}_{ml}]. \end{aligned} \quad (\text{C.4})$$

Nun kann der funktionale Abstand

$$Z_{\text{FM}} = \sum_{m,l=-N/2}^{N/2-1} \left(I_{ml}^{(\text{FM})} - X_{ml}^{(\text{FM})} \right)^2 \quad (\text{C.5})$$

zwischen der in Gleichung (C.3) berechneten FM-FROG-Spur und der auf das m - l -Gitter angepaßten FM-FROG Messung $X_{ml}^{(\text{FM})}$ berechnet werden. Eine effiziente Berechnung der Ableitungen von Z_{FM} nach den zu optimierenden Parametern $R_k := \text{Re}[E_k]$ und $J_k := \text{Im}[E_k]$ beschleunigt die verwendete

Gradientenmethode. Über die Gleichungen (C.1) und (C.2) nehmen diese Ableitungen die Form

$$\frac{\partial Z_{\text{FM}}}{\partial R_k} = 2 \sum_{m,l=-N/2}^{N/2-1} \left(I_{ml}^{(\text{FM})} - X_{ml}^{(\text{FM})} \right) \frac{\partial I_{ml}^{(\text{FM})}}{\partial R_k} \quad (\text{C.6})$$

an, die analog auch für die imaginäre Ableitung von Z_{FM} gilt. Setzt man nun alle Substitutionen bis hin zu den Gleichungen (C.1) und (C.2) ein, heben sich alle Terme der Summenausdrücke bis auf ein oder zwei Ausnahmen auf. Dadurch vereinfacht sich die Berechnung der Ableitungen erheblich. Nach der Berchnung der FM-FROG-Spur I_{ml}^{FM} aus dem elektrischen Feld E_k ist keine weitere Fouriertransformation mehr nötig. Stattdessen erleichtern die folgenden analytischen Ausdrücke die Gradientenberechnung der Gleichung (C.6):

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_{ml}^{(\text{FM})}}{\partial R_k} = & c_{ml} \left(\tilde{J}_{m0} \left[J_{k-l} c_{km} + J_{k+l} c_{(k+l)m} + R_{k-l} s_{km} \right. \right. \\ & + \left. R_{k+l} s_{(k+l)m} \right] + \tilde{R}_{m0} \left[R_{k-l} c_{km} + R_{k+l} c_{(k+l)m} \right. \\ & - \left. J_{k-l} s_{km} - J_{k+l} s_{(k+l)m} \right] + 2 \tilde{J}_{ml} \left[R_k s_{km} + J_k c_{km} \right] \\ & + 2 \tilde{R}_{ml} \left[R_k c_{km} - J_k s_{km} \right] + s_{ml} \left(\tilde{J}_{m0} \left[R_{k-l} c_{km} \right. \right. \\ & + \left. R_{k+l} c_{(k+l)m} - J_{k-l} s_{km} - J_{k+l} s_{(k+l)m} \right] - \tilde{R}_{m0} \cdot \\ & \left[J_{k-l} c_{km} + J_{k+l} c_{(k+l)m} + R_{k-l} s_{km} + R_{k+l} s_{(k+l)m} \right] \\ & + 2 \tilde{J}_{ml} \left[J_k s_{km} - R_k c_{km} \right] + 2 \tilde{R}_{ml} \left[R_k s_{km} + J_k c_{km} \right] \Big) \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_{ml}^{(\text{FM})}}{\partial J_k} = & c_{ml} \left(\tilde{J}_{m0} \left[R_{k-l} c_{km} + R_{k+l} c_{(k+l)m} - J_{k-l} s_{km} \right. \right. \\ & - \left. J_{k+l} s_{(k+l)m} \right] - \tilde{R}_{m0} \left[J_{k-l} c_{km} + J_{k+l} c_{(k+l)m} \right. \\ & + \left. R_{k-l} s_{km} + R_{k+l} s_{(k+l)m} \right] + 2 \tilde{J}_{ml} \left[R_k c_{km} - J_k s_{km} \right] \\ & - 2 \tilde{R}_{ml} \left[J_k c_{km} + R_k s_{km} \right] + s_{ml} \left(\tilde{R}_{m0} \left[J_{k-l} s_{km} \right. \right. \\ & + \left. J_{k+l} s_{(k+l)m} - R_{k-l} c_{km} - R_{k+l} c_{(k+l)m} \right] - \tilde{J}_{m0} \cdot \\ & \left[J_{k-l} c_{km} + J_{k+l} c_{(k+l)m} + R_{k-l} s_{km} + R_{k+l} s_{(k+l)m} \right] \\ & + 2 \tilde{J}_{ml} \left[J_k c_{km} + R_k s_{km} \right] + 2 \tilde{R}_{ml} \left[R_k c_{km} - J_k s_{km} \right] \Big). \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

Es sei angemerkt, dass die Ausdrücke R_k und J_k mit nur einem Index den Real- und Imaginäranteil des elektrischen Feldes $E_k = R_k + iJ_k$ angeben, während die mit doppeltem Index behafteten Größen vom FROG-Feld der Gleichung (C.1) stammen. Die Gleichungen (C.7) und (C.8) beschleunigen den FM-FROG-Algorithmus, da sie eine numerische Berechnung der Ableitungen unnötig machen.

Anhang D

Ein Ansatz zur direkten Phasenrekonstruktion: MEFISTO

Eine parallel zum IFROG entwickelte Methode der Impulscharakterisierung beruht auf dem gleichen experimentellen Datensatz, nutzt jedoch die in der IFROG-Spur enthaltene Information zur direkten Phasenrekonstruktion. Dieses Verfahren wurde 2005 unter dem Akronym MEFISTO („Measurement of the Electric Field by Interferometric Spectral Trace Observation“ [113]) publiziert. Ähnlich dem SPIDER-Verfahren erhält man auf analytische Weise die spektrale Phase des Impulses. Zusammen mit dem unabhängig gemessenen Spektrum des Impulses gelingt dann die Rekonstruktion des elektrischen Impulsfeldes.

Tests haben gezeigt, dass grobe Phasenstrukturen, wie sie z.B. ein starker linearer Chirp verursacht, bei spektral schmalbandigen Impulsen mit Impulsdauern über 40 fs tatsächlich gut wiedergegeben werden können (siehe Abbildung D.1). Eine zufriedenstellende Phasenrekonstruktion spektral breitbandiger Impulse wurde jedoch bisher noch nicht demonstriert.

Da dieses Verfahren noch einmal aus einem anderen Blickwinkel den direkten Einfluss der Impulsphase auf eine IFROG-Spur verdeutlicht, wird an dieser Stelle die zugrundeliegende analytische Datenauswertung vorgestellt. Hierfür muss zunächst die Fouriertransformation der Gleichung (3.13) bezüglich der τ -Achse durchgeführt werden:

$$F_{\text{IFROG}}(\omega, \omega_\tau) = \mathcal{F}_\tau \{ I_{\text{IFROG}}(\omega, \tau) \} . \quad (\text{D.1})$$

Aus Gründen der besseren Lesbarkeit wird die Frequenzachse $\Delta\omega$ in diesem

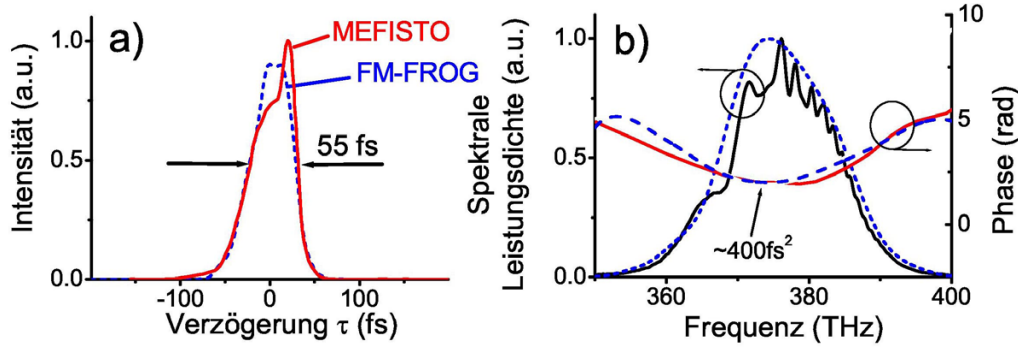


Abbildung D.1: Gegenüberstellung der Impulsrekonstruktionsergebnisse des FM-FROG-Verfahrens (gestrichelte Linien) und der MEFISTO Methode (rote, durchgezogene Linien) basierend auf dem Datensatz der Abbildung 3.22. a) Zeitlicher Intensitätsverlauf des gepulsten Impulses eines Ti:Saphir Verstärkersystems, b) Separat gemessenes Impulsspektrum (schwarze, durchgezogene Linie) und spektrale Impulsphase der MEFISTO-Rekonstruktion (rote, durchgezogene Linie). Die zugehörige iterative FM-FROG-Rekonstruktion von Phase und Spektrum ist gestrichelt eingezeichnet. Die gezeigte MEFISTO-Rekonstruktion wurde von Ivan Amat-Roldán durchgeführt und zur Verfügung gestellt.

Abschnitt durch ω dargestellt, da der Unterschied zwischen beiden Größen in der bisherigen Schreibweise lediglich in einer Verschiebung um $2\omega_0$ besteht. Wie bereits diskutiert wurde, enthält das erste Seitenband in dieser Darstellung bei der Frequenz $\omega_\tau = \omega_0 + \omega/2$ die Information der FM-FROG-Amplitude:

$$\begin{aligned} F_{\text{FMFROG}}(\omega, \omega_\tau) &= \mathcal{F}_\tau \{ 8 \cos(\omega_\tau \tau) \cdot I_{\text{FMFROG}}(\omega, \tau) \} \\ &= 2 \tilde{E}_{\text{SH}}(\omega) \tilde{E}^*(\omega + \omega_0 - \omega_\tau) \tilde{E}^*(\omega_\tau - \omega_0) + c.c., \end{aligned} \quad (\text{D.2})$$

wobei für das SH-Feld

$$\tilde{E}_{\text{SH}}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega') \tilde{E}(\omega - \omega') d\omega' \quad (\text{D.3})$$

gilt. $\tilde{E}(\omega) = \mathcal{F}_t \{ \tilde{\mathcal{E}}(t) \}$ ist die fouriertransformierte Einhüllende des elektrischen Impulsfeldes. Über Gleichung (D.2) ist es nun möglich, diese Feldeinhüllende $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ auf analytischem Wege aus einer IFROG-Spur zu gewinnen. Um dies zu verdeutlichen, muss die Spektraldarstellung des optischen Impulses in ihrer polaren Form $\tilde{E}(\omega) = A(\omega) \cdot e^{i\varphi(\omega)}$ eingesetzt werden:

$$\begin{aligned} F_{\text{FMFROG}}(\omega, \omega_\tau) &= 4 A_{\text{SH}}(\omega) A(\omega + \omega_0 - \omega_\tau) A(\omega_\tau - \omega_0) \\ &\quad \times \cos [\varphi_{\text{SH}}(\omega) - \varphi(\omega + \omega_0 - \omega_\tau) - \varphi(\omega_\tau - \omega_0)] . \end{aligned} \quad (\text{D.4})$$

Die spektrale Amplitude $A(\omega) = \sqrt{I(\omega)}$ des Impulses muss aus einem separat gemessenen, fundamentalen Impulsspektrum $I(\omega)$ ermittelt und eingesetzt werden. Eine zusätzliche Messung des SHG-Spektrums des Impulses liefert auf gleichem Wege die zugehörige SH-Amplitude $A_{\text{SH}}(\omega)$. Genaugenommen ist eine solche Messung nicht unbedingt notwendig, da das SHG-Spektrum bereits in der IFROG-Spur enthalten ist. So reicht beispielsweise die Filterung des Basisbandes [ersten zwei Terme der Gleichung (3.14)] und eine anschließende Isolierung des Datensatzes bei $\tau = 0$ im ω - τ -Raum für eine praktikable Rekonstruktion des SHG-Spektrums. Als einzige unbekannte Größen der Gleichung (D.4) bleiben nur noch die spektralen Phasen des fundamentalen und des SHG-Impulses, $\varphi(\omega)$ und $\varphi_{\text{SH}}(\omega)$, übrig. Da $F_{\text{FMFROG}}(\omega, \omega_\tau)$ der Amplitude des ersten Seitenbandes einer IFROG-Spur entspricht, kann man nun unbekannte von gemessenen Werten trennen:

$$\begin{aligned} & \varphi_{\text{SH}}(\omega) - \varphi(\omega + \omega_0 - \omega_\tau) - \varphi(\omega_\tau - \omega_0) \\ &= \pm \cos^{-1} \left[\frac{F_{\text{FMFROG}}(\omega, \omega_\tau)}{4 A_{\text{SH}}(\omega) A(\omega + \omega_0 - \omega_\tau) A(\omega_\tau - \omega_0)} \right]; \\ &\stackrel{!}{=} \pm \cos^{-1} [\mathcal{A}(\omega, \omega_\tau)] . \end{aligned} \quad (\text{D.5})$$

Sämtliche Messgrößen gehen hierbei in den Ausdruck $\mathcal{A}(\omega, \omega_\tau)$ ein. Eine Rekonstruktion der spektralen Phase $\varphi(\omega)$ gelingt über die Auswahl zweier Schnitte durch das erste Seitenband bei jeweils unterschiedlichem ω_τ (siehe Abbildung D.2). Eine Subtraktion beider Datensätze lässt die spektrale Phase $\varphi_{\text{SH}}(\omega)$ des SHG-Impulses verschwinden.

Wählt man beispielsweise die Werte $\omega_\tau = \omega_0$ und $\omega_\tau = \omega_0 - \Delta\omega$ für die zwei Schnitte $F_{\text{FMFROG}}(\omega, \omega_\tau = \omega_0)$ und $F_{\text{FMFROG}}(\omega, \omega_\tau = \omega_0 - \Delta\omega)$ durch das erste Seitenband der Fourier-transformierten IFROG-Spur (siehe Abbildung D.2), gewinnt man aus Gleichung (D.5) die zwei Phasenverläufe:

$$\varphi_{\text{SH}}(\omega) - \varphi(\omega) - \varphi(0) = \pm \cos^{-1} [\mathcal{A}(\omega, \omega_\tau = \omega_0)] \quad (\text{D.6})$$

$$\varphi_{\text{SH}}(\omega) - \varphi(\omega + \Delta\omega) - \varphi(-\Delta\omega) = \pm \cos^{-1} [\mathcal{A}(\omega, \omega_\tau = \omega_0 - \Delta\omega)] . \quad (\text{D.7})$$

Subtraktion der Gleichung (D.6) von Gleichung (D.7) isoliert die Änderung der spektralen Impulsphase in Frequenzschritten $\Delta\omega$:

$$\begin{aligned} \Delta\varphi(\omega) &= \varphi(\omega + \Delta\omega) - \varphi(\omega) \\ &= \pm \cos^{-1} [\mathcal{A}(\omega, \omega_\tau = \omega_0)] \mp \cos^{-1} [\mathcal{A}(\omega, \omega_\tau = \omega_0 - \Delta\omega)] \\ &\quad + \varphi(0) - \varphi(-\Delta\omega). \end{aligned} \quad (\text{D.8})$$

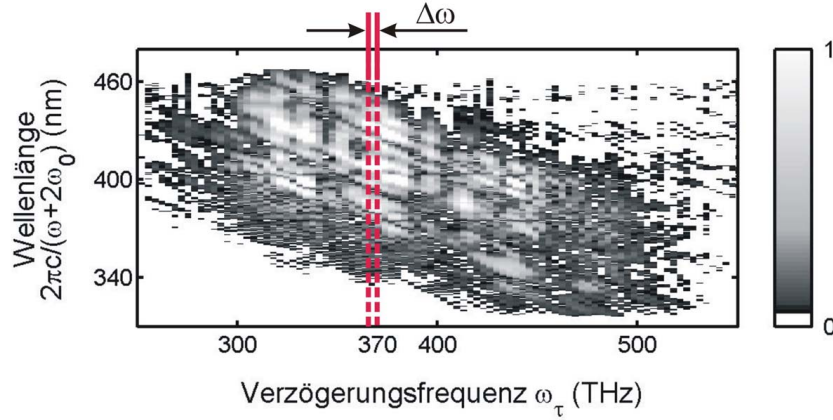


Abbildung D.2: MEFISTO-Auswertung einer IFROG-Messung: Zur Phasenrekonstruktion werden zwei Schnitte (rot gestrichelte Linien) durch das FM-FROG-Seitenband $F_{\text{FMFROG}}(\omega, \omega_\tau)$ der bezüglich τ fouriertransformierten IFROG-Spur benötigt. Der Abstand $\Delta\omega$ beider Schnitte legt das Abtastintervall der spektralen Impulsphase fest. Hier dargestellt ist das erste Seitenband aus Abbildung 3.19 a).

Da der Term $\varphi(0) - \varphi(-\Delta\omega)$ frequenzunabhängig ist, handelt es sich hierbei lediglich um einen konstanten Phasen-Offset. Analog zum SPIDER-Verfahren liefert die MEFISTO-Auswertung die lokale Steigung der spektralen Phase an aufeinanderfolgenden Frequenzpunkten, deren Abstand $\Delta\omega$ beträgt. Die spektrale Impulsphase lässt sich nun, beginnend mit einer beliebigen Startphase $\varphi(\omega_1)$, durch Aufsummation der sukzessive abfolgenden Phasenänderungen $\Delta\varphi(\omega)$ rekonstruieren:

$$\varphi(\omega_{k+1}) = \varphi(\omega_1) + \sum_{j=1}^k \Delta\varphi(\omega_j). \quad (\text{D.9})$$

Allerdings ist das Vorzeichen der Phase durch die Verwendung der inversen Funktion $\cos^{-1}(\mathcal{A})$ unbestimmt, was zu zwei ununterscheidbaren Lösungen $\tilde{E}(\omega)$ und $\tilde{E}^*(\omega)$ führt. Diese, für das SHG-FROG charakteristische Mehrdeutigkeit der Messung beruht auf der Verwendung einer quadratischen Nichtlinearität und kann durch eine Kontrollmessung mit bekanntem Phasengang aufgehoben werden.

Zwei Punkte schränken die Anwendbarkeit dieser Methode ein. Zum einen beruht die Phasenrekonstruktion auf der Messung von drei verschiedenen Amplituden und ist somit, im Gegensatz zum SPIDER-Verfahren, besonders anfällig für Variationen in der spektralen Antwort des experimentellen Aufbaus und für Intensitätskalibrationsfehler. Experimentelles Rauschen und reduzierte Dynamikbereiche sollten erheblichen Einfluss auf die rekonstruierte

Phase haben. Ein weiteres Problem stellt die Neigung des ersten Seitenbandes der fouriertransformierten IFROG-Spur dar, wie es z.B. in Abbildung D.2 zu erkennen ist. Bei spektral breitbandigen Impulsen decken senkrechte Schnitte bezüglich der ω_τ -Achse nur einen reduzierten spektralen Ausschnitt des Impulses ab. Somit gelingt die Phasenrekonstruktion nur in einem Teilbereich des Impulsspektrums. Das letztere Problem sollte durch die Wahl von mehr als nur zwei Schnittbereichen, die den gesamten, vom ersten Seitenband beanspruchten spektralen ω_τ -Bereich abdecken, gelöst werden können. Trotzdem beeinträchtigen beide genannten Punkte speziell die Charakterisierung ultrakurzer Impulse mit nur wenigen Zyklen des elektrischen Feldes.

Im Rahmen einer Kooperation mit dem Institut de Ciències Fotòniques sollen Messungen an Sub-10-fs-Impulsen die Anwendbarkeit und Zuverlässigkeit des hier vorgestellten Rekonstruktionsalgorithmus in diesem Impulsdauerbereich testen.

Literaturverzeichnis

- [1] MAIMAN, T. H.: Stimulated optical radiation in ruby. In: *Nature* 187 (1960), S. 493
- [2] DITMIRE, T. ; ZWEIBACK, J. ; YANOVSKY, V. P. ; COWAN, T. E. ; HAYS, G. ; WHARTON, K. B.: Nuclear fusion from explosions of femtosecond laser-heated deuterium clusters. In: *Nature* 398 (1999), S. 489
- [3] YAMANE, K. ; KITO, T. ; MORITA, R. ; YAMASHITA, M.: 2.8-fs transform-limited optical-pulse generation in the monocycle region. In: *Postdeadline papers book of CLEO 2004, CPDC2* (Optical Society of America, Washington DC, 2004)
- [4] KIENBERGER, R. ; GOULIELMAKIS, E. ; UIBERACKER, M. ; BALTUSKA, A. ; YAKOVLEV, V. ; BAMMER, F. ; SCRINZI, A. ; WESTERWALBESLOH, T. ; KLEINEBERG, U. ; HEINZMANN, U. ; DRESCHER, M. ; KRAUSZ, F.: Atomic transient recorder. In: *Nature* 427 (2004), Nr. 6977, S. 817
- [5] ZEWAIL, A. H.: Laser femtochemistry. In: *Science* 242 (1988), S. 1645
- [6] GRUEBELE, M. ; ROBERTS, G. ; DANTUS, M. ; BOWMAN, R. M. ; ZEWAIL, A. H.: Femtosecond temporal spectroscopy and direct invesion to the potential - application to iodine. In: *Chem. Phys. Lett.* 166 (1990), S. 459
- [7] BOYD, R. W.: *Nonlinear optics*. Academic Press, San Diego, 1992
- [8] BRABEC, T. ; KRAUSZ, F.: Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. In: *Rev. Mod. Phys.* 72 (2000), S. 545
- [9] WARREN, W. S. ; RABITZ, H. ; DAHLEH, M.: Coherent control of quantum dynamics: the dream is alive. In: *Science* 259 (1993), S. 1581

- [10] KOHLER, B. ; YAKOVLEV, V. V. ; CHE, J. W. ; KRAUSE, J. L. ; MESSINA, M. ; WILSON, K. R. ; SCHWENTNER, N. ; WHITNELL, R. M. ; YAN, Y. J.: Quantum control of wave-packet evolution with tailored femtosecond pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995), S. 3360
- [11] ASSION, A. ; BAUMERT, T. ; BERGT, M. ; BRIXNER, T. ; KIEFER, B. ; SEYFRIED, V. ; STREHLE, M. ; GERBER, G.: Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses. In: *Science* 282 (1998), S. 919
- [12] KUNDE, J. ; SIEGNER, U. ; ARLT, S. ; MORIER-GENOUD, F. ; KELLER, U.: Chirp-controlled ultrafast optical nonlinearities in semiconductors. In: *Appl. Phys. Lett.* 73 (1998), S. 3025
- [13] TIGNON, J. ; MARQUEZINI, M. V. ; HASCHE, T. ; CHEMLA, D. S.: Spectral interferometry of semiconductor nanostructures. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 35 (1999), S. 510
- [14] ROPERS, C. ; PARK, D. J. ; STIBENZ, G. ; STEINMEYER, G. ; KIM, J. ; KIM, D. S. ; LIENAU, C.: Femtosecond light transmission and subradiant damping in plasmonic crystals. In: *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), S. 113901
- [15] AUSTON, D. H. ; CHEUNG, K. P. ; VALDMANIS, J. A. ; KLEINMAN, D. A.: Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media. In: *Phys. Rev. Lett.* 53 (1984), S. 1555
- [16] VALDMANIS, J. A. ; MOUROU, G.: Subpicosecond electrooptic sampling: principles and applications. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 22 (1986), S. 69
- [17] GOULIELMAKIS, E. ; UIBERACKER, M. ; KIENBERGER, R. ; BALTUSKA, A. ; YAKOVLEV, V. ; SCRINZI, A. ; WESTERWALBESLOH, T. ; KLEINBERG, U. ; HEINZMANN, U. ; DRESCHER, M. ; KRAUSZ, F.: Direct measurement of light waves. In: *Science* 305 (2004), S. 1267
- [18] ISHII, N. ; TEISSET, C. Y. ; FUJI, T. ; KÖHLER, S. ; SCHMID, K. ; VEISZ, L. ; BALTUŠKA, A. ; KRAUSZ, F.: Seeding of an eleven femtosecond optical parametric chirped pulse amplifier and its Nd³⁺ picosecond pump laser from a single broadband Ti:sapphire oscillator. In: *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 12 (2006), S. 173
- [19] VERHOEF, A. J. ; SERES, J. ; SCHMID, K. ; NOMURA, Y. ; TEMPEA, G. ; VEISZ, L. ; KRAUSZ, F.: Compression of the pulses of a Ti:sapphire

- laser system to 5 femtoseconds at 0.2 terawatt level. In: *Appl. Phys. B* 82 (2006), S. 513
- [20] NISOLI, M. ; DE SILVESTRI, S. ; SVELTO, O.: Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. In: *Appl. Phys. Lett.* 68 (1996), S. 2793
 - [21] SARTANIA, S. ; CHENG, Z. ; LENZNER, M. ; TEMPEA, G. ; SPIELMANN, C. ; KRAUSZ, F. ; FERENCZ, K.: Generation of 0.1-TW 5-fs optical pulses at a 1-kHz repetition rate. In: *Opt. Lett.* 22 (1997), S. 1562
 - [22] PAULUS, G. G. ; GRASBORN, F. ; WALTHER, H. ; VILLORESI, P. ; NISOLI, M. ; STAGIRA, S. ; PRIORI, E. ; DE SILVESTRI, S.: Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. In: *Nature* 414 (2001), S. 182
 - [23] DRESCHER, M. ; HENTSCHEL, M. ; KIENBERGER, R. ; TEMPEA, G. ; SPIELMANN, C. ; REIDER, G. A. ; CORKUM, P. B. ; KRAUSZ, F.: X-ray pulses approaching the attosecond frontier. In: *Science* 291 (2001), S. 1923
 - [24] DIELS, J.-C. ; DIELS, J.-C. (Hrsg.) ; RUDOLPH, W. (Hrsg.): *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic Press, San Diego, 1996
 - [25] BRABEC, T. ; KRAUSZ, F.: Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime. In: *Phys. Rev. Lett.* 78 (1997), S. 3282
 - [26] WEGENER, M.: *Extreme nonlinear optics*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 2005
 - [27] PAULUS, G. G. ; LINDNER, F. ; WALTHER, H. ; BALTUŠKA, A. ; GOULIELMAKIS, E. ; LEZIUS, M. ; KRAUSZ, F.: Measurement of the phase of few-cycle laser pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), S. 253004
 - [28] APOLONSKI, A. ; DOMBI, P. ; PAULUS, G. G. ; KAKEHATA, M. ; HOLZWARTH, R. ; UDEM, Th. ; LEMELL, Ch. ; TORIZUKA, K. ; BURGDÖRFER, J. ; HÄNSCH, T. W. ; KRAUSZ, F.: Observation of light-phase-sensitive photoemission from a metal. In: *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004), S. 073902
 - [29] KRESS, M. ; LÖFFLER, T. ; THOMSON, M. D. ; DÖRNER, R. ; GIMPEL, H. ; ZROST, K. ; ERGLER, T. ; MOSHAMMER, R. ; MORGNER, U. ; ULLRICH, J. ; ROSKOS, H. G.: Determination of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses with terahertz-emission spectroscopy. In: *nature physics* 2 (2006), S. 327

- [30] TELLE, H. R. ; STEINMEYER, G. ; DUNLOP, A. E. ; STENGER, J. ; SUTTER, D. H. ; KELLER, U.: Carrier-envelope offset phase control: A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation. In: *Appl. Phys. B* 69 (1999), S. 327
- [31] JONES, D. J. ; DIDDAMS, S. A. ; RANKA, J. K. ; STENTZ, A. ; WINDELER, R. S. ; HALL, J. L. ; CUNDIFF, S. T.: Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. In: *Science* 288 (2000), Nr. 5466, S. 635
- [32] BALTUŠKA, A. ; UDEM, Th. ; UIBERACKER, M. ; HENTSCHEL, M. ; GOULIELMAKIS, E. ; GOHLE, Ch. ; HOLZWARTH, R. ; YAKOVLEV, V. S. ; SCRINZI, A. ; HÄNSCH, T. W. ; KRAUSZ, F.: Attosecond control of electronic processes by intense light fields. In: *Nature* 421 (2003), S. 611
- [33] FIBICH, G. ; GAETA, A. L.: Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides. In: *Opt. Lett.* 25 (2000), S. 335
- [34] DEMARTINI, F. ; TOWNES, C. H. ; GUSTAFSON, T. K. ; KELLEY, P. L.: Self-steepening of light-pulses. In: *Phys. Rev.* 164 (1967), S. 312
- [35] GRISCHKOWSKY, D. ; COURTENS, E. ; ARMSTRONG, J. A.: Observation of self-steepening of optical pulses with possible shock formation. In: *Phys. Rev. Lett.* 31 (1973), S. 422
- [36] GAETA, A. L.: Catastrophic collapse of ultrashort pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), S. 3582
- [37] AMMOISOV, M. V. ; DELONE, N. B. ; KRAINOV, V. P.: Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. In: *Sov. Phys. JETP* 64 (1986), S. 1191
- [38] VOZZI, C. ; NISOLI, M. ; SANSONE, G. ; STAGIRA, S. ; DE SILVESTRI, S.: Optimal spectral broadening in hollow-fiber compressor systems. In: *Appl. Phys. B* 80 (2005), S. 285
- [39] AKÖZBEK, N. ; TRUSHIN, S. A. ; BALTUŠKA, A. ; FUSS, W. ; GOULIELMAKIS, E. ; KOSMA, K. ; KRAUSZ, F. ; PANJA, S. ; UIBERACKER, M. ; SCHMID, W. E. ; BECKER, A. ; SCALORA, M. ; BLOEMER, M.: Extending the supercontinuum spectrum down to 200 nm with few-cycle pulses. In: *New Journal of Physics* 8 (2006), Nr. 9, 177. <http://stacks.iop.org/1367-2630/8/177>

- [40] SPENCE, D. E. ; KEAN, P. N. ; SIBBETT, W.: 60-fs pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphir laser. In: *Opt. Lett.* 16 (1991), S. 42
- [41] FORK, R. L. ; GREEN, B. I. ; SHANK, C. V.: Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. In: *Appl. Phys. Lett.* 38 (1981), S. 671
- [42] FORK, R. L. ; BRITO-CRUZ, C. H. ; BECKER, P. C. ; SHANK, C. V.: Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation. In: *Opt. Lett.* 12 (1987), S. 483
- [43] HAUS, H. A.: Theory of mode-locking with a fast saturable absorber. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 11 (1975), S. 736
- [44] ELL, R. ; MORGNER, U. ; KÄRTNER, F. X. ; FUJIMOTO, J. G. ; IPPEN, E. P. ; SCHEUER, V. ; ANGELOW, G. ; TSCHUDI, T. ; LEDERER, M. J. ; BOIKO, A. ; LUTHER-DAVIES, B.: Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti:sapphire laser. In: *Opt. Lett.* 26 (2001), S. 373
- [45] BINHAMMER, T. ; RITTWEGER, E. ; MORGNER, U. ; ELL, R. ; KARTNER, F. X.: Spectral phase control and temporal superresolution toward the single-cycle pulse. In: *Opt. Lett.* 31 (2006), Nr. 10, S. 1552
- [46] BALTUŠKA, A. ; WEI, Z. ; PSHENICHNIKOV, M. S. ; WIERSMA, D. A.: Optical pulse compression to 5 fs at a 1-MHz repetition rate. In: *Opt. Lett.* 22 (1997), S. 102
- [47] BALTUŠKA, A. ; PSHENICHNIKOV, M. S. ; WIERSMA, D. A.: Amplitude and phase characterization of 4.5-fs pulses by frequency-resolved optical gating. In: *Opt. Lett.* 23 (1998), S. 1474
- [48] STRICKLAND, D. ; MOUROU, G.: Compression of amplified chirped optical pulses. In: *Opt. Commun.* 56 (1985), S. 219
- [49] NISOLI, M. ; DE SILVESTRI, S. ; SVELTO, O. ; SZIPÖCS, R. ; FERENCZ, K. ; SPIELMANN, Ch. ; SARTANIA, S. ; KRAUSZ, F.: Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. In: *Opt. Lett.* 22 (1997), S. 522
- [50] SCHENKEL, B. ; BIEGERT, J. ; KELLER, U. ; VOZZI, C. ; NISOLI, M. ; SANSONE, G. ; STAGIRA, S. ; DE SILVESTRI, S. ; SVELTO, O.: Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum. In: *Opt. Lett.* 28 (2003), S. 1987

- [51] YAMANE, K. ; ZHANG, Z. ; OKA, K. ; MORITA, R. ; YAMASHITA, M.: Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation. In: *Opt. Lett.* 28 (2003), S. 2258
- [52] DURFEE, C. G. ; BACKUS, S. ; KAPTEYN, H. C. ; MURNANE, M. M.: Intense 8-fs pulse generation in the deep ultraviolet. In: *Opt. Lett.* 24 (1999), Nr. 10, S. 697
- [53] NAZARKIN, A. ; KORN, G. ; WITTMANN, M. ; ELSAESSER, T.: Generation of multiple phase-locked Stokes and anti-Stokes components in an impulsively excited Raman medium. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), S. 2560
- [54] ZHAVORONKOV, N. ; KORN, G.: Generation of single intense short optical pulses by ultrafast molecular phase modulation. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), S. 203901
- [55] BAUMGARTNER, R. A. ; BYER, R. L.: Optical parametric amplification. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 15 (1979), S. 432
- [56] BAUM, P. ; LOCHBRUNNER, S. ; GALLMANN, L. ; STEINMEYER, G. ; KELLER, U. ; RIEDLE, E.: Real-time characterization and optimal phase control of tunable visible pulses with a flexible compressor. In: *Appl. Phys. B* 74 (2002), S. S219
- [57] BAUM, P. ; BREUER, M. ; RIEDLE, E. ; STEINMEYER, G.: Brewster-angled chirped mirrors for broadband pulse compression without dispersion oscillations. In: *Opt. Lett.* 31 (2006), S. 2220
- [58] BALTUŠKA, A. ; FUJI, T. ; KOBAYASHI, T.: Visible pulse compression to 4 fs by optical parametric amplification and programmable dispersion control. In: *Opt. Lett.* 27 (2002), S. 306
- [59] TREBINO, R. ; TREBINO, R. (Hrsg.): *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. Kluwer Academic Publishers, Boston, MA, 2000
- [60] IACONIS, C. ; WALMSLEY, I. A.: Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 35 (1999), S. 501
- [61] ARMSTRONG, J. A.: Measurement of picosecond laser pulse widths. In: *Appl. Phys. Lett.* 10 (1967), S. 16

- [62] DIELS, J.-C. ; VAN STRYLAND, E. ; BENEDICT, G.: Generation and measurement of 200 femtosecond optical pulses. In: *Opt. Commun.* 25 (1978), S. 93
- [63] DIELS, J. C. ; FONTAINE, J. J. ; McMICHAEL, I. C. ; SIMONI, F.: Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy. In: *Appl. Opt.* 24 (1985), S. 1270
- [64] NAGANUMA, K. ; MOGI, K. ; YAMADA, H.: General method for ultrashort light pulse chirp measurement. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 25 (1989), S. 1225
- [65] CHUNG, J. H. ; WEINER, A. M.: Ambiguity of ultrashort pulse shapes retrieved from the intensity autocorrelation and the power spectrum. In: *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 7 (2001), S. 656
- [66] GERCHBERG, R. W. ; SAXTON, W. O.: A practical algorithm for the determination of the phase from image and diffraction plane pictures. In: *Optic* 35 (1972), S. 237
- [67] GALLMANN, L. ; STEINMEYER, G. ; IMESHEV, G. ; MEYN, J.-P. ; FEJER, M. M. ; KELLER, U.: Sub-6-fs blue pulses generated by quasi-phase-matching second-harmonic generation pulse compression. In: *Appl. Phys. B* 74 (2002), S. S237
- [68] NICHOLSON, J. W. ; JASAPARA, J. ; RUDOLPH, W. ; OMENETTO, F. G. ; TAYLOR, A. J.: Full-field characterization of femtosecond pulses by spectrum and cross-correlation measurements. In: *Opt. Lett.* 24 (1999), S. 1774
- [69] TREBINO, R. ; KANE, D. J.: Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses - Frequency-Resolved Optical Gating. In: *J. Opt. Soc. Am. A* 10 (1993), S. 1101
- [70] KANE, D. J. ; TREBINO, R.: Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using Frequency-Resolved Optical Gating. In: *Opt. Lett.* 18 (1993), S. 823
- [71] KANE, D. J. ; TREBINO, R.: Characterization of arbitrary femtosecond pulses using Frequency-Resolved Optical Gating. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 29 (1993), S. 571
- [72] TREBINO, R. ; LONG, K. W. D. ; FITTINGHOFF, D. N. ; SWEETSER, J. N. ; KRUMBÜGEL, M. A. ; RICHMAN, B. A. ; KANE, D. J.: Measuring

- ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. In: *Rev. Sci. Instrum.* 68 (1997), S. 3277
- [73] CLEMENT, T. S. ; TAYLOR, A. J. ; KANE, D. J.: Single-shot measurement of the amplitude and phase of ultrashort laser pulses in the violet. In: *Opt. Lett.* 20 (1995), S. 70
 - [74] TSANG, T. ; KRUMBÜGEL, M. A. ; DELONG, K. W. ; FITTINGHOFF, D. N. ; TREBINO, R.: Frequency-resolved optical gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation. In: *Opt. Lett.* 21 (1996), S. 1381
 - [75] TREACY, E.: Measurement and interpretation of dynamic spectrograms of picosecond light pulses. In: *J. Appl. Phys.* 42 (1971), S. 3848
 - [76] STARK, H. ; STARK, H. (Hrsg.): *Image Recovery: Theory and Application*. Academic Press: Orlando, 1987
 - [77] PAYE, J. ; RAMASWAMY, M. ; FUJIMOTO, J. G. ; IPPEN, E. P.: Measurement of the amplitude and phase of ultrashort light pulses from spectrally resolved autocorrelation. In: *Opt. Lett.* 18 (1993), S. 1946
 - [78] DELONG, K. W. ; TREBINO, R. ; HUNTER, J. ; WHITE, W. E.: Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 11 (1994), S. 2206
 - [79] TAFT, G. ; RUNDQUIST, A. ; MURNANE, M. M. ; CHRISTOV, I. P. ; KAPTEYN, H. C. ; DELONG, K. W. ; FITTINGHOFF, D. N. ; KRUMBÜGEL, M. A. ; SWEETSER, J. N. ; TREBINO, R.: Measurement of 10-fs laser pulses. In: *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 2 (1996), S. 575
 - [80] DELONG, K. W. ; FITTINGHOFF, D. N. ; TREBINO, R. ; KOHLER, B. ; WILSON, K.: Pulse Retrieval in Frequency-Resolved Optical Gating Based on the Method of Generalized Projections. In: *Opt. Lett.* 19 (1994), S. 2152
 - [81] REID, D. T.: Algorithm for complete and rapid retrieval of ultrashort pulse amplitude and phase from a sonogram. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 35 (1999), S. 1584
 - [82] PRESS, W. H. ; TEUKOLSKY, S. A. ; VETTERLING, W. T. ; FLANNERY, B. P.: Numerical Recipes in C. In: *2nd ed., ch.10.5, pp. 412, Cambridge University Press, Cambridge, UK* (1992)

- [83] TIEN, A.-C. ; KANE, S. ; SQUIER, J. ; KOHLER, B. ; WILSON, K.: Geometrical distortions and correction algorithm in single-shot pulse measurements: application to frequency-resolved optical gating. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 13 (1996), S. 1160
- [84] BALTUŠKA, A. ; PSHENICHNIKOV, M. S. ; WIERSMA, D. A.: Second-harmonic generation frequency-resolved optical gating in the single-cycle regime. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 35 (1999), S. 459
- [85] KARASAWA, N. ; LI, L. ; SUGURO, A. ; SHIGEKAWA, H. ; MORITA, R. ; YAMASHITA, M.: Optical pulse compression to 5.0 fs by use of only a spatial light modulator for phase compensation. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 18 (2001), S. 1742
- [86] IACONIS, C. ; WALMSLEY, I. A.: Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. In: *Opt. Lett.* 23 (1998), S. 792
- [87] FROEHLI, C. ; LACOURT, A. ; VIENOT, J. C.: Notions de réponse impulsionnelle et de fonction de transfert temporelles des pupilles optiques, justifications expérimentales et applications. In: *Nouv. Rev. Optique* 4 (1973), S. 183
- [88] PIASECKI, J. ; COLOMBEAU, B. ; VAMPOUILLE, M. ; FROEHLI, C. ; ARNAUD, J. A.: New method for measuring impulse-response of optical fibers. In: *Appl. Opt.* 19 (1980), S. 3749
- [89] KORNELIS, W. ; BIEGERT, J. ; TISCH, J. W. G. ; NISOLI, M. ; SANSONE, G. ; VOZZI, C. ; DE SILVESTRI, S. ; KELLER, U.: Single-shot kilohertz characterization of ultrashort pulses by spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. In: *Opt. Lett.* 28 (2003), S. 281
- [90] DORRER, C. ; BEAUVOIR, B. de ; LEBLANC, C. ; RANC, S. ; ROUSSEAU, J. P. ; CHAMBARET, J.-P. ; SALIN, F.: Single-shot real-time characterization of chirped-pulse amplification systems by spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. In: *Opt. Lett.* 24 (1999), S. 1644
- [91] SHUMAN, T. M. ; ANDERSON, M. E. ; BROMAGE, J. ; IACONIS, C. ; WAXER, L. ; WALMSLEY, I. A.: Real-time SPIDER: ultrashort pulse characterization at 20 Hz. In: *Opt. Express* 5 (1999), S. 134

- [92] DORRER, C. ; KANG, I.: Highly sensitive direct characterization of femtosecond pulses by electro-optic spectral shearing interferometry. In: *Opt. Lett.* 28 (2003), S. 477
- [93] GALLMANN, L. ; SUTTER, D. H. ; MATUSCHEK, N. ; STEINMEYER, G. ; KELLER, U. ; IACONIS, C. ; WALMSLEY, I. A.: Characterization of sub-6-fs optical pulses with spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. In: *Opt. Lett.* 24 (1999), S. 1314
- [94] ZAVELANI-ROSSI, M. ; CERULLO, G. ; DE SILVESTRI, S. ; GALLMANN, L. ; MATUSCHEK, N. ; STEINMEYER, G. ; KELLER, U. ; ANGELOW, G. ; SCHEUER, V. ; TSCHUDI, T.: Pulse compression over a 170-THz bandwidth in the visible by use of only chirped mirrors. In: *Opt. Lett.* 26 (2001), S. 1155
- [95] MORITA, R. ; HIRASAWA, M. ; KARASAWA, N. ; KUSAKA, S. ; NAKAGAWA, N. ; YAMANE, K. ; LI, L. ; SUGURO, A. ; YAMASHITA, M.: Sub-5 fs optical pulse identification. In: *Meas. Sci. Technol.* 13 (2002), S. 1710
- [96] DORRER, C. ; LONDERO, P. ; WALMSLEY, I. A.: Homodyne detection in spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. In: *Opt. Lett.* 26 (2001), S. 1510
- [97] LONDERO, P. ; ANDERSON, M. E. ; RADZEWICZ, C. ; IACONIS, C. ; WALMSLEY, I. A.: Measuring ultrafast pulses in the near-ultraviolet using spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction. In: *J. Mod. Opt.* 50 (2003), S. 179
- [98] DORRER, C.: Implementation of spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction with a simultaneously recorded reference interferogram. In: *Opt. Lett.* 24 (1999), S. 1532
- [99] MÜLLER, A. ; LAUBSCHER, M.: Spectral phase and amplitude interferometry for direct electric-field reconstruction. In: *Opt. Lett.* 26 (2001), S. 1915
- [100] DORRER, C. ; KOSIK, E. M. ; WALMSLEY, I. A.: Direct space-time characterization of the electric fields of ultrashort optical pulses. In: *Opt. Lett.* 27 (2002), S. 548
- [101] GALLMANN, L. ; STEINMEYER, G. ; SUTTER, D. H. ; RUPP, T. ; IACONIS, C. ; WALMSLEY, I. A. ; KELLER, U.: Spatially resolved amplitude

- and phase characterization of femtosecond optical pulses. In: *Opt. Lett.* 26 (2001), S. 96
- [102] BAUM, P. ; LOCHBRUNNER, S. ; RIEDLE, E.: Zero-additional-phase SPIDER: full characterization of visible and sub-20-fs ultraviolet pulses. In: *Opt. Lett.* 29 (2004), S. 210
- [103] KOSIK, E. M. ; RADUNSKY, A. S. ; WALMSLEY, I. A. ; DORRER, C.: Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit. In: *Opt. Lett.* 30 (2005), S. 326
- [104] REYNAUD, F. ; SALIN, F. ; BARTHELEMY, A.: Measurement of phase shifts introduced by nonlinear optical phenomena on subpicosecond pulses. In: *Opt. Lett.* 14 (1989), S. 275
- [105] FITTINGHOFF, D. N. ; BOWIE, J. L. ; SWEETSER, J. N. ; JENNINGS, R. T. ; KRUMBÜGEL, M. A. ; DELONG, K. W. ; TREBINO, R. ; WALMSLEY, I. A.: Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses. In: *Opt. Lett.* 21 (1996), S. 884
- [106] TAKEDA, M. ; INA, H. ; KOBAYASHI, S.: Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry. In: *J. Opt. Soc. Am.* 72 (1982), S. 156
- [107] KEUSTERS, D. ; TAN, H.-S. ; O'SHEA, P. ; ZEEK, E. ; TREBINO, R. ; WARREN, W. S.: Relative-phase ambiguities in measurement of ultrashort pulses with well-separated multiple frequency components. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 20 (2003), S. 2226
- [108] STIBENZ, G. ; STEINMEYER, G.: High dynamic range characterization of ultrabroadband white-light continuum pulses. In: *Opt. Express* 12 (2004), S. 6319
- [109] STIBENZ, G. ; STEINMEYER, G.: Optimizing spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. In: *Rev. Sci. Instr.* 77 (2006), S. 073105
- [110] WYATT, A. S. ; WALMSLEY, I. A. ; STIBENZ, G. ; STEINMEYER, G.: Sub-10 fs pulse characterization using spatially encoded arrangement for spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction. In: *Opt. Lett.* 31 (2006), S. 1914
- [111] STIBENZ, G. ; STEINMEYER, G.: Interferometric frequency-resolved optical gating. In: *Opt. Express* 13 (2005), S. 2617

- [112] STIBENZ, G. ; STEINMEYER, G.: Structures of interferometric frequency-resolved optical gating. In: *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 12 (2006), S. 286
- [113] ROLDÁN, I. A. ; CORMACK, I. G. ; LOZA-ALVAREZ, P. ; ARTIGAS, D.: Measurement of the Electric Field by Interferometric Spectral Trace Observation. In: *Opt. Lett.* 30 (2005), S. 1063
- [114] STIBENZ, G. ; ROPERS, C. ; LIENAU, C. ; WARMUTH, C. ; WYATT, A. S. ; WALMSLEY, I. A. ; STEINMEYER, G.: Advanced methods for the characterization of few-cycle light pulses: a comparison. In: *Appl. Phys. B* 83 (2006), S. 511
- [115] GALLMANN, L. ; SUTTER, D. H. ; MATUSCHEK, N. ; STEINMEYER, G. ; KELLER, U.: Techniques for the characterization of sub-10-fs optical pulses: a comparison. In: *Appl. Phys. B* 70 (2000), S. S67
- [116] HAUS, H. A.: *Waves and Fields in Optoelectronics*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, 1984
- [117] FITTINGHOFF, D. N. ; SQUIER, J. A. ; BARTY, C. P. J. ; SWEETSER, J. N. ; TREBINO, R. ; MÜLLER, M.: Collinear type II second-harmonic-generation frequency-resolved optical gating for use with high-numerical-aperture objectives. In: *Opt. Lett.* 23 (1998), S. 1046
- [118] FITTINGHOFF, D. N. ; MILLARD, A. C. ; SQUIER, J. A. ; MÜLLER, M.: Frequency-resolved optical gating measurement of ultrashort pulses passing through a high numerical aperture objective. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 35 (1999), S. 479
- [119] ROLDÁN, I. A. ; CORMACK, I. G. ; LOZA-ALVAREZ, P. ; ARTIGAS, D.: Starch-based second-harmonic-generated collinear frequency-resolved optical gating pulse characterization at the focal plane of a high-numerical-aperture lens. In: *Opt. Lett.* 29 (2004), S. 2282
- [120] GALLMANN, L. ; STEINMEYER, G. ; SUTTER, D. H. ; MATUSCHEK, N. ; KELLER, U.: Collinear type-II second-harmonic-generation frequency-resolved optical gating for the characterization of sub-10-fs optical pulses. In: *Opt. Lett.* 25 (2000), S. 269
- [121] WEINER, A. M.: Effect of group-velocity mismatch on the measurement of ultrashort optical pulses via second harmonic generation. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 19 (1983), S. 1276

- [122] ROLDÁN, I. A. ; CORMACK, I. G. ; LOZA-ALVAREZ, P. ; GUALDA, E. J. ; ARTIGAS, D.: Ultrashort pulse characterization with SHG collinear-FROG. In: *Opt. Express* 12 (2004), S. 1169
- [123] NAKATSUKA, H. ; GRISCHKOWSKY, D. ; BALANT, A. C.: Nonlinear Picosecond-Pulse Propagation through Optical Fibers with Positive Group Velocity Dispersion. In: *Phys. Rev. Lett.* 47 (1981), S. 910
- [124] TREACY, E. B.: Optical pulse compression with diffraction gratings. In: *IEEE J. Quantum Electron.* QE-5 (1969), S. 454
- [125] JOHNSON, A. M. ; STOLEN, R. H. ; SIMPSON, W. M.: $80\times$ single-stage compression of frequency doubled Nd:yttrium aluminum garnet laser pulses. In: *Appl. Phys. Lett.* 44 (1984), S. 729
- [126] FORK, R. L. ; MARTINEZ, O. E. ; GORDON, J. P.: Negative dispersion using pairs of prisms. In: *Opt. Lett.* 9 (1984), S. 150
- [127] CERULLO, G. ; DE SILVESTRI, S. ; NISOLI, M. ; SARTANIA, S. ; STAGIRA, S. ; SVELTO, O.: Few-optical-cycle laser pulses: from high peak power to frequency tunability. In: *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 6 (2000), S. 948
- [128] SUDA, A. ; HATAYAMA, M. ; NAGASAKA, K. ; MIDORIKAWA, K.: Generation of sub-10-fs, 5-mJ-optical pulses using a hollow fiber with a pressure gradient. In: *Appl. Phys. Lett.* 86 (2005), S. 111116
- [129] HAURI, C. P. ; KORNELIS, W. ; HELBING, F. W. ; HEINRICH, A. ; COUAIRON, A. ; MYSYROWICZ, A. ; BIEGERT, J. ; KELLER, U.: Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation. In: *Appl. Phys. B* 79 (2004), S. 673
- [130] STEINMEYER, G. ; STIBENZ, G.: Generation of sub-4-fs pulses via compression of a white-light continuum using only chirped mirrors. In: *Appl. Phys. B* 82 (2006), S. 175
- [131] STIBENZ, G. ; ZHAVORONKOV, N. ; STEINMEYER, G.: Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament. In: *Opt. Lett.* 31 (2006), S. 274
- [132] NISOLI, M. ; STAGIRA, S. ; DE SILVESTRI, S. ; SVELTO, O. ; SARTANIA, S. ; CHENG, Z. ; TEMPEA, G. ; SPIELMANN, C. ; KRAUSZ, F.: Toward a terawatt-scale sub-10-fs laser technology. In: *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 4 (1998), S. 414

- [133] MARCATILI, E. A. J. ; SCHMELTZER, R. A.: Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. In: *Bell Syst. Tech. J.* 43 (1964), S. 1783
- [134] AGRAWAL, G. P.: *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, Inc., 1995
- [135] NISOLI, M. ; STAGIRA, S. ; DE SILVESTRI, S. ; SVELTO, O. ; SARTANIA, S. ; CHENG, Z. ; LENZNER, M. ; SPIELMANN, Ch. ; KRAUSZ, F.: A novel-high energy pulse compression system: generation of multigigawatt sub-5-fs pulses. In: *Appl. Phys. B* 65 (1997), S. 189
- [136] TOMLINSON, W. J. ; STOLEN, R. H. ; SHANK, C. V.: Compression of optical pulses chirped by self-phase modulation in fibers. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 1 (1984), S. 139
- [137] SHERRIFF, R. E.: Analytic expressions for group-delay dispersion and cubic dispersion in arbitrary prism sequences. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 15 (1998), S. 1224
- [138] WEINER, A. M. ; LEAIRD, D. E. ; PATEL, J. S. ; WULLERT, J. R.: Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator. In: *Opt. Lett.* 15 (1990), S. 326
- [139] ZEEK, E. ; MAGINNIS, K. ; BACKUS, S. ; RUSSEK, U. ; MURNANE, M. ; MOUROU, G. ; KAPTEYN, H. ; VDOVIN, G.: Pulse compression by use of deformable mirrors. In: *Opt. Lett.* 24 (1999), S. 493
- [140] SZIPÖCS, R. ; FERENCZ, K. ; SPIELMANN, C. ; KRAUSZ, F.: Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers. In: *Opt. Lett.* 19 (1994), S. 201
- [141] STEINMEYER, G.: Dispersion oscillation in ultrafast phase-correction devices. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 39 (2003), S. 1027
- [142] GIRES, F. ; TOURNOIS, P.: Interferometre utilisable pour la compression d'impulsions lumineuses modulees en frequence. In: *C. R. Acad. Sci. Paris* 258 (1964), S. 6112
- [143] KÄRTNER, F. X. ; MATUSCHEK, N. ; SCHIBLI, T. ; KELLER, U. ; HAUS, H. A. ; HEINE, C. ; MORF, R. ; SCHEUER, V. ; TILSCH, M. ; TSCHUDI, T.: Design and fabrication of double-chirped mirrors. In: *Opt. Lett.* 22 (1997), S. 831

- [144] MATUSCHEK, N. ; KÄRTNER, F. X. ; KELLER, U.: Theory of double-chirped mirrors. In: *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 4 (1998), S. 197
- [145] DOBROWOLSKI, J. A. ; TIKHONRAVOV, A. V. ; TRUBETSKOV, M. K. ; SULLIVAN, B. T. ; VERLY, P. G.: Optimal single-band normal-incidence antireflection coatings. In: *Appl. Opt.* 35 (1996), S. 644
- [146] MATUSCHEK, N. ; GALLMANN, L. ; SUTTER, D. H. ; STEINMEYER, G. ; KELLER, U.: Back-side-coated chirped mirrors with ultra-smooth broadband dispersion characteristics. In: *Appl. Phys. B* 71 (2000), S. 509
- [147] TEMPEA, G.: Tilted-front-interface chirped mirrors. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 18 (2001), S. 1747
- [148] SANSONE, G. ; STEINMEYER, G. ; VOZZI, C. ; STAGIRA, S. ; NISOLI, M. ; DE SILVESTRI, S. ; STARKE, K. ; RISTAU, D. ; SCHENKEL, B. ; BIEGERT, J. ; GOSTEVA, A. ; KELLER, U.: Mirror dispersion control of a hollow fiber supercontinuum. In: *Appl. Phys. B* 78 (2004), S. 551
- [149] NISOLI, M. ; SANSONE, G. ; STAGIRA, S. ; VOZZI, C. ; DE SILVESTRI, S. ; SVELTO, O.: Ultra-broadband continuum generation by hollow-fiber cascading. In: *Appl. Phys. B* 75 (2002), S. 601
- [150] CHIN, S. L. ; ROLLAND, C. ; CORKUM, P. B. ; KELLY, P.: Multiphoton ionization of Xe and Kr with intense 0.62- μm femtosecond pulses. In: *Phys. Rev. Lett* 61 (1988), S. 153
- [151] AUGST, S. ; STRICKLAND, D. ; MEYERHOFER, D. D. ; CHIN, S. L. ; EBERLY, J. H.: Tunnel ionization of noble gases in a high-intensity laser field. In: *Phys. Rev. Lett.* 63 (1989), S. 2212
- [152] DE SILVESTRI, S. ; NISOLI, M. ; SANSONE, G. ; STAGIRA, S. ; SVELTO, O.: *Few-cycle laser pulse generation and its application*. Topics in Applied Physics **95**, 137, 2004
- [153] LEHMEIER, H. J. ; LEUPACHER, W. ; PENZKOFER, A.: Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N_2 determined by third harmonic generation. In: *Opt. Commun.* 56 (1985), S. 67
- [154] CORKUM, P. B. ; ROLLAND, C. ; ALFANO, R. R. (Hrsg.): *The Supercontinuum Source*. Springer, New York, 1989

- [155] HOMOELLE, D. ; GAETA, A. L.: Nonlinear propagation dynamics of an ultrashort pulse in a hollow waveguide. In: *Opt. Lett.* 25 (2000), S. 761
- [156] BRAUN, A. ; KORN, G. ; LIU, X. ; DU, D. ; SQUIER, J. ; MOUROU, G.: Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air. In: *Opt. Lett.* 20 (1995), S. 73
- [157] BRODEUR, A. ; CHIEN, C. Y. ; ILKOV, F. A. ; CHIN, S. L. ; KOSAREVA, O. G. ; KANDIDOV, V. P.: Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air. In: *Opt. Lett.* 22 (1997), S. 304
- [158] LANGE, H. R. ; GRILLON, G. ; RIPOCHE, J.-F. ; FRANCO, M. A. ; LAMOUREUX, B. ; PRADE, B. S. ; MYSYROWICZ, A.: Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air: moving focus or pulse self-guiding? In: *Opt. Lett.* 23 (1998), S. 120
- [159] RAIROUX, P. ; SCHILLINGER, H. ; NIEDERMEIER, S. ; RODRIGUEZ, M. ; RONNEBERGER, F. ; SAUERBREY, R. ; STEIN, B. ; WAITE, D. ; WEDEKIND, C. ; WILLE, H. ; WÖSTE, L. ; ZIENER, C.: Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses. In: *Appl. Phys. B* 71 (2000), S. 573
- [160] BERGÉ, L. ; COUAIRON, A.: Gas-induced solitons. In: *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001), S. 1003
- [161] CHAMPEAUX, S. ; BERGÉ, L.: Femtosecond pulse compression in pressure-gas cells filled with argon. In: *Phys. Rev. E* 68 (2003), S. 066603
- [162] SHOROKHOV, O. ; PUKHOV, A. ; KOSTYUKOV, I.: Self-compression of laser pulses in plasma. In: *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), S. 265002
- [163] COUAIRON, A. ; FRANCO, M. ; MYSYROWICZ, A. ; BIEGERT, J. ; KELLER, U.: Pulse self-compression to the single-cycle limit by filamentation in a gas with a pressure gradient. In: *Opt. Lett.* 30 (2005), S. 2657
- [164] LANGE, H. R. ; RIPOCHE, J.-F. ; CHIRON, A. A. ; LAMOUREUX, B. ; FRANCO, M. A. ; PRADE, B. ; NIBBERING, E. T. J. ; MYSYROWICZ, A.: Time-space self-compression of femtosecond laser pulses in air. In: *International Quantum Electronics Conference (IQEC 98)*, Optical Society of America, 1998, p. 243

- [165] WAGNER, N. L. ; GIBSON, E. A. ; POPMINTCHEV, T. ; CHRISTOV, I. P. ; MURNANE, M. ; KAPTEYN, H. C.: Self-compression of ultrashort pulses through ionization-induced spatiotemporal reshaping. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), S. 173902
- [166] NIBBERING, E. T. J. ; CURLEY, P. F. ; GRILLON, G. ; PRADE, B. S. ; FRANCO, M. A. ; SALIN, F. ; MYSYROWICZ, A.: Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air. In: *Opt. Lett.* 21 (1996), S. 62
- [167] MLEJNEK, M. ; WRIGHT, E. M. ; MOLONEY, J. V.: Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. In: *Opt. Lett.* 23 (1998), S. 382
- [168] NURHUDA, M. ; SUDA, A. ; HATAYAMA, M. ; NAGASAKA, K. ; MIDORIKAWA, K.: Propagation dynamics of femtosecond laser pulses in argon. In: *Phys. Rev. A* 66 (2002), S. 023811
- [169] WARD, H. ; BERGÉ, L.: Temporal shaping of femtosecond solitary pulses in photoionized media. In: *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003), S. 053901
- [170] ZHAVORONKOV, N. ; GRITSAI, Y. ; KORN, G. ; ELSAESSER, T.: Ultra-short efficient laser-driven hard X-ray source operated at a kHz repetition rate. In: *Appl. Phys. B* 79 (2004), S. 663
- [171] SKUPIN, S. ; STIBENZ, G. ; NUTER, R. ; BERGÉ, L. ; LEDERER, F. ; SOKOLLIK, T. ; SCHNÜRER, M. ; ZHAVORONKOV, N. ; STEINMEYER, G.: Self-compression by femtosecond pulse filamentation: Experiments versus numerical simulations. In: *Phys. Rev. E* 74 (2006), S. 056604
- [172] SKUPIN, S. ; BERGÉ, L.: Self-guiding of femtosecond light pulses in condensed media: Plasma generation versus chromatic dispersion. In: *Physica D* 220 (2006), S. 14
- [173] PEREMOLOV, A. M. ; POPOV, V. S. ; TERENCEV, M. V.: Ionization of atoms in an alternating electric field. In: *Sov. Phys. JETP* 23 (1966), S. 924
- [174] MLEJNEK, M. ; WRIGHT, E. M. ; MOLONEY, J. V.: Femtosecond pulse propagation in argon: A pressure dependence study. In: *Phys. Rev. E* 58 (1998), S. 4903
- [175] WIGNER, E.: On the quantum correction for thermodynamic equilibrium. In: *Phys. Rev.* 40 (1932), S. 749

- [176] COHEN, L.: Time-frequency distributions - a review. In: *Proc. IEEE* 77 (1989), S. 941
- [177] PAYE, J.: The chronocyclic representation of ultrashort light pulses. In: *IEEE J. Quantum Electron.* 28 (1992), S. 2262
- [178] IACONIS, C. ; WONG, V. ; WALMSLEY, I. A.: Direct interferometric techniques for characterizing ultrashort optical pulses. In: *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 4 (1998), S. 285
- [179] YEREMENKO, S. ; BALTUŠKA, A. ; PSHENICHNIKOV, M. S. ; WIERSMA, D. A.: The criterion of pulse reconstruction quality based on Wigner representation. In: *Appl. Phys. B* 70 (2000), S. S109
- [180] PEATROSS, J. ; RUNDQUIST, A.: Temporal decorrelation of short laser pulses. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 15 (1998), S. 216
- [181] BALTUŠKA, A. ; WEI, Z. ; PSHENICHNIKOV, M. S. ; WIERSMA, D. A. ; SZIPÖCS, R.: All-solid-state cavity-dumped sub-5-fs laser. In: *Appl. Phys. B* 65 (1997), S. 175

Publikationsliste

- G. Stibenz, G. Steinmeyer, “High dynamic range characterization of ultrabroadband white-light continuum pulses,” *Opt. Express* **12**, 6319 (2004).
- G. Stibenz, G. Steinmeyer, “Dynamic spectral interferometry for measuring the nonlinear amplitude and phase response of a saturable absorber mirror,” *Appl. Phys. Lett.* **86**, 081105 (2005).
- G. Stibenz, G. Steinmeyer, “Interferometric frequency-resolved optical gating,” *Opt. Express* **13**, 2617 (2005).
- G. Stibenz, G. Steinmeyer, “Structures of interferometric frequency-resolved optical gating,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **12**, 286 (2006).
- G. Stibenz, N. Zhavoronkov, G. Steinmeyer, “Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament,” *Opt. Lett.* **31**, 274 (2006).
- G. Stibenz, C. Ropers, C. Lienau, C. Warmuth, A. S. Wyatt, I. A. Walmsley, G. Steinmeyer, “Advanced methods for the characterization of few-cycle light pulses: a comparison,” *Appl. Phys. B* **83**, 511 (2006).
- G. Stibenz, G. Steinmeyer, “Optimizing spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction,” *Rev. Sci. Instr.* **77**, 073105 (2006).
- G. Steinmeyer, G. Stibenz, “Generation of sub-4-fs pulses via compression of a white-light continuum using only chirped mirrors,” *Appl. Phys. B* **82**, 175 (2006).
- A. S. Wyatt, I. A. Walmsley, G. Stibenz, G. Steinmeyer, “Sub-10 fs pulse characterization using spatially encoded arrangement for spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction,” *Opt. Lett.* **31**, 1914 (2006).

- G. Steinmeyer, G. Stibenz, “Compression and characterization of few-cycle white-light supercontinuum pulses,” *Laser Physics* **15**, 1 (2005).
- C. Ropers, D. J. Park, G. Stibenz, G. Steinmeyer, J. Kim, D. S. Kim, C. Lienau, “Femtosecond light transmission and subradiant damping in plasmonic crystals,” *Phys. Rev. Lett.* **94**, 113901 (2005).
- C. Ropers, G. Stibenz, G. Steinmeyer, R. Müller, D. J. Park, K. G. Lee, J. Kim, Q. H. Park, D. S. Kim, C. Lienau, “Ultrafast dynamics of surface plasmon polaritons in plasmonic metamaterials,” *Appl. Phys. B* **84**, 183 (2006).
- S. Skupin, G. Stibenz, R. Nuter, L. Bergé, F. Lederer, T. Sokollik, M. Schnürer, N. Zhavoronkov, G. Steinmeyer, “Self-compression by femtosecond pulse filamentation: Experiments versus numerical simulations,” *Phys. Rev. E* **74**, 056604 (2006).
- I. Shchatsinin, T. Laarmann, G. Stibenz, A. Stalmashonak, N. Zhavoronkov, C. P. Schulz, G. Steinmeyer, I. V. Hertel, “C₆₀ exposed to intense laser radiation with a pulse duration down to 9 fs: Excitation on a time scale beyond electron-electron and electron-phonon coupling,” *J. Chem. Phys.* **125**, 194320 (2006).

Danksagung

Eine erfolgreiche Forschungszeit ist ohne die Unterstützung und den Ansporn durch andere aus dem Arbeits- und privaten Umfeld nicht vorstellbar. Diesen Leuten, auch wenn sie im Folgenden nicht ausdrücklich mit erwähnt sein sollten, möchte ich hiermit ausdrücklich danken. Mein besonderer Dank gilt Herrn Professor Dr. Thomas Elsässer, für die Aufnahme in seine Gruppe unter optimalen Promotionsvoraussetzungen und die Möglichkeit der Teilnahme an internationalen Konferenzen im Ausland.

Dr. Günter Steinmeyer danke ich vielfmals für die gewissenhafte und motivierende Betreuung. Die freundschaftliche Atmosphäre und Zusammenarbeit, sowie vielseitigen Anregungen und Ermutigungen haben die Freude an der Arbeit und an der Physik in großem Maße gefördert. Die gemeinsamen CLEO-Besuche in Baltimore und Long Beach haben mich sehr bereichert und sind von bleibender Erinnerung.

Mein herzlicher Dank gilt allen Mitarbeitern der Abteilung C2 für die angenehme, hilfsbereite Atmosphäre, die vielen interessanten Gespräche und die netten, gemeinsamen Kaffeerunden.

Insbesondere möchte ich Herrn Dr. Roland Müller für seine stete Hilfsbereitschaft und die gewissenhafte Durchsicht des Skriptes danken.

Für die technische Unterstützung speziell bei der raschen Realisierung von Experimenten danke ich Wolfgang Goleschny und für die Behebung auftretender Softwareprobleme Frau Friedrich. Aber auch allen weiteren: Jens Tomm¹, Fritz Weik*, Sandy Schwirzke-Schaaf, Dorit Fischer, Monika Tischer, Herrn Glas*, Rüdiger Grunwald* und Uwe Griebner* danke ich für die vielen kleinen Ratschläge und Hilfestellungen.

Bei Mathias Mönster, Florian Saas, Claus Ropers, Nils Huse, Robert Pomränke, Tien Quoc Tran, Mathias Ziegler, Peter Gaal, Corneliu-Catalin Neacsu, Mareike Kiel, Clemens von Korff Schmising bedanke ich mich für ihre besondere Hilfsbereitschaft. Den Projekt- und Gruppenleitern: Christoph Lienau*, Klaus Reimann*, Markus Raschke*, Matias Bargheer*, Michael Wörner*, Claus-Peter Schulz* und Erik Nibbering* sowie Nick Zhavoronkov* bin ich für

¹Dr. oder PhD.

diverse Ratschläge und die erfahrene Unterstützung mit Dank verbunden. Unserer freundlichen Verwaltung, allen voran Margret Lehmann, Kathleen Krüger, Bernd Kinski, Renate Steinsdörfer u.v.m sei ebenfalls gedankt.

Für eine unglaublich schnelle, orthographische Durchsicht der Dissertationschrift danke ich Iris Parplies ganz herzlich.

Nicht zuletzt möchte ich mich bei meiner Frau Maryam für ihre Geduld und liebevolle Begleitung während dieser Zeit bedanken. Erwähnen möchte ich auch meine beiden Töchter, Roxane und Samira, die durch ihr bloßes Dasein und ihr glückliches Wesen mein Leben besonders bereichert haben. Bedanken möchte ich mich auch bei Turan, Chosro, Ziena, Alexandra, Sascha, Guido, Nadi und Massoud für die häufige Hilfe in schwierigen Zeitabschnitten, die uns sehr entlastet hat.

Lebenslauf

Mein Lebenslauf wird aus Datenschutzgründen in der elektronischen Version meiner Arbeit nicht mit veröffentlicht.

Selbständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, die Dissertation selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfen und Hilfsmittel angefertigt zu haben.

Ich habe mich anderwärts nicht um einen Doktorgrad beworben und besitze einen entsprechenden Doktorgrad nicht.

Ich erkläre die Kenntnisnahme der dem Verfahren zugrunde liegenden Promotionsordnung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I der Humboldt-Universität zu Berlin.

Berlin, den 12. Dezember 2006

Gero Stibenz